



**SKRIPSI – TK 141581**  
**SINTESIS KOMPOSIT  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ /GRAPHENE-LIKE**  
**SEBAGAI ELEKTROKATALIS KATODA PADA**  
**Zn-AIR BATTERY**

**Oleh :**  
**Cicik Khoirun Nisa'**  
**NRP. 02211645000011**

**Dosen Pembimbing 1**  
**Dr. Widiyastuti, S.T., M.T.**  
**NIP. 19750306 200212 2 002**

**Dosen Pembimbing 2**  
**Prof. Dr. Ir. Heru Setyawan, M.Eng.**  
**NIP. 19670203 199102 1 001**

**DEPARTEMEN TEKNIK KIMIA**  
**FAKULTAS TEKNOLOGI INDUSTRI**  
**INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER**  
**SURABAYA**  
**2018**



**FINAL PROJECT – TK 141581  
SYNTHESIS OF  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ /GRAPHENE-LIKE COMPOSITE  
AS ELECTROCATALYST OF CATHODE IN  $\text{Zn}$ -AIR  
BATTERY**

**Author :  
Cicik Khoirun Nisa'  
NRP. 02211645000011**

**Advisor 1  
Dr. Widiyastuti, S.T., M.T.  
NIP. 19750306 200212 2 002**

**Advisor 2  
Prof. Dr. Ir.Heru Setyawan, M.Eng.  
NIP. 19670203 199102 1 001**

**DEPARTMENT OF CHEMICAL ENGINEERING  
FACULTY OF INDUSTRIAL TECHNOLOGY  
INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER  
SURABAYA  
2018**

## LEMBAR PENGESAHAN

### "SINTESIS KOMPOSIT $\text{Fe}_3\text{O}_4$ /GRAPHENE-LIKE SEBAGAI KATODA PADA Zn-AIR BATTERY"

Diajukan untuk memenuhi salah satu syarat memperoleh gelar  
Sarjana Teknik pada Program Studi S-1 Departemen Teknik  
Kimia Institut Teknologi Sepuluh Nopember Surabaya

Oleh :

Cicik Khoirun Nisa'

NRP. 02211645000011

Disetujui oleh Tim Penguji Tugas Akhir :

1. Dr. Widiyastuti, S.T., M.T.  
(Pembimbing)
2. Prof. Dr. Ir. Heru Setyawan, M.Eng.  
(Pembimbing)
3. Prof. Dr. Ir. Sugeng Winardi, M.Eng.  
(Penguji)
4. Dr. Kusdianto, S.T., M.Sc., Eng.  
(Penguji)
5. Ni Made Intan Putra Suarni, S.T., M.T.  
(Penguji)

.....

.....

.....

.....

.....



Surabaya, Juli 2018

# **SINTESIS KOMPOSIT $\text{Fe}_3\text{O}_4$ /GRAPHENE-LIKE SEBAGAI ELEKTROKATALIS KATODA PADA Zn-AIR BATTERY**

Nama : Cicik Khoirun Nisa' (02211645000011)  
Departemen : Teknik Kimia FTI-ITS  
Pembimbing : Dr. Widiyastuti, S.T., M.T.  
Prof. Dr. Ir. Heru Setyawan, M.Eng.

## **ABSTRAK**

*Metal-air battery* saat ini sedang mendapatkan perhatian lebih karena memiliki banyak keunggulan, diantaranya memiliki *energy density* yang lebih besar dibandingkan dengan baterai konvensional, keberadaannya yang melimpah, harganya yang murah, dan ramah lingkungan. Salah satu bagian terpenting dari *metal-air battery* adalah katoda, yang harus memenuhi persyaratan sifat katalitik dan porositas yang baik. Material yang digunakan sebagai elektrokatalis katoda pada *metal-air battery* hingga saat ini adalah platinum karena sifatnya yang superior. Akan tetapi, kelangkaan dan harga yang mahal menyebabkan platinum tidak lagi menjadi pilihan yang tepat sehingga dibutuhkan inovasi untuk mengembangkan alternatif elektrokatalis katoda. Material yang dipertimbangkan adalah oksida logam transisi karena kelimpahannya yang tinggi, harganya yang murah, dan ramah lingkungan.  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  yang termasuk dalam golongan oksida logam transisi memiliki potensi yang besar untuk dikembangkan karena sifat katalitiknya yang baik. Namun, diperlukan material lain untuk menunjang konduktivitas elektrik dan porositasnya. Oleh karena itu, pada penelitian ini dilakukan sintesis komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ /graphene-like sebagai alternatif elektrokatalis pada katoda *metal-air battery*.

Penelitian ini bertujuan untuk mengetahui pengaruh komposisi pencampuran  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{graphene-like}$  dalam aplikasinya sebagai elektrokatalis katoda pada *Zn-air battery*. Penelitian ini dimulai dengan sintesis  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  secara elektrokimia menggunakan multielektroda, kemudian sintesis *graphene-like* dengan metode kalsinasi-Hummer termodifikasi-reduksi, selanjutnya sintesis komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{graphene-like}$  dilakukan menggunakan *ball mill*. Adapun karakterisasi yang akan dilakukan dalam penelitian ini antara lain *X-Ray Diffraction* (XRD), *Raman Spectroscopy*, *Surface Area Analyzer*, *Scanning Electron Microscopy* (SEM), dan *Energy Dispersive X-Ray* (EDX). Performansi elektrokatalis dievaluasi menggunakan teknik *Rotating Disk Electrode* (RDE), yaitu melalui uji *Cyclic Voltammetry* (CV), *Linear Sweep Voltammetry* (LSV) dan *Linear Polarization* (LP).

Hasil uji karakterisasi menunjukkan telah terbentuk komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{graphene-like}$  yang memiliki luas permukaan antara 393 – 542  $\text{m}^2/\text{g}$  dengan ukuran pori 5,1 – 6,8 nm yang termasuk mesopori. Semakin banyak komposisi  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dalam komposit maka semakin kecil luas permukaan komposit namun semakin merata persebarannya pada permukaan *graphene-like*. Hasil uji performansi elektrokatalis menunjukkan kemampuan reduksi oksigen dan jumlah elektron yang ditransfer meningkat seiring bertambahnya komposisi  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dalam komposit.

**Kata kunci:**  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , *Graphene-like*, Komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Graphene-like}$ , *Ball mill*, Elektrokatalis.

# **SYNTHESIS OF $\text{Fe}_3\text{O}_4$ /GRAPHENE-LIKE COMPOSITE AS ELECTROCATALYST OF CATHODE IN Zn-AIR BATTERY**

Name : Cicik Khoirun Nisa' (02211645000011)  
Department : Teknik Kimia FTI-ITS  
Advisors : Dr. Widiyastuti, S.T., M.T.  
Prof. Dr. Ir. Heru Setyawan, M.Eng.

## **ABSTRACT**

*Currently, metal-air battery is getting more attention due to its advantages such as large energy density compared to conventional batteries, its abundance, cheap, and environmentally friendly. One of the most important parts of the metal-air battery is the cathode, which must have the requirements of good catalytic and porosity properties. Nowadays, the common material used as a cathode electrocatalyst on metal-air battery is platinum because of its superior properties. However, the scarcity and the expensive price cause platinum no longer to be the right choice, so we need to develop cathode electrocatalyst alternatives. The transition metal oxide is considered due to its high abundance, low cost, and environmentally friendly.  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  belonging to the class of transition metal oxides has great potential to be developed because of its excellent catalytic properties. However, other materials are needed to support electrical conductivity and porosity. Therefore, in this study,  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ /graphene-like composite was synthesized as an electrocatalytic alternative to the metal-air battery cathode.*

*This study aims to determine the effect of  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ /graphene-like mixing composition on its application as*

*cathode electrocatalyst in metal-air battery. This research begins with electrochemically  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  synthesis using multielectrode, then graphene-like synthesis with calcination-modified Hummer-reduction method, then synthesis of  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ /graphene-like composites using ball mill. The characterizations that will be conducted are X-Ray Diffraction (XRD), Raman Spectroscopy, Surface Area Analyzer, Scanning Electron Microscopy (SEM), and Energy Dispersive X-Ray (EDX). Electrocatalytic performance was evaluated using Rotating Disk Electrode (RDE) technique, through Cyclic Voltammetry (CV), Linear Sweep Voltammetry (LSV) and Linear Polarization (LP) test.*

*The result of characterization tests showed that  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ /graphene-like composite has a surface area between 393 - 542  $\text{m}^2/\text{g}$  with pore size of 5,1 – 6,8 nm which is mesoporous. The more composition of  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  in the composite tends to decrease the surface area, but the  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  becomes more distributed on the graphene-like surface. The results of electrocatalytic performance test showed that oxygen reduction capability and the number of electrons being transferred increases as the  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  composition increases in the composite.*

**Keywords:**  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , Graphene-like,  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  / Graphene-like Composite, Ball mill, Electrocatalyst.

## KATA PENGANTAR

Segala puji bagi Allah, Tuhan seru sekalian alam dan tiada satupun yang menyamai-Nya. Shalawat serta salam semoga tetap terlimpahkan kepada junjungan kita Nabi Muhammad SAW beserta keluarganya.

Hanya dengan rahmat, taufiq serta hidayah Allah sajalah dan juga dorongan yang kuat dari semua pihak, maka penulis dapat menyelesaikan Laporan Skripsi yang berjudul :

### **"SINTESIS KOMPOSIT $\text{Fe}_3\text{O}_4$ /GRAPHENE-LIKE SEBAGAI ELEKTROKATALIS KATODA PADA Zn-AIR BATTERY"**

Terselesaikannya Laporan Skripsi ini tidak lepas dari peran berbagai pihak yang turut memberikan arahan, bimbingan, dan motivasi sehingga penulis dapat menyelesaikannya dengan baik dan tepat waktu. Oleh karena itu, pada kesempatan ini penyusun mengucapkan terima kasih kepada :

1. Ibu Dr. Widiyastuti, ST., MT. dan Bapak Prof. Dr. Ir. Heru Setyawan, M.Eng., selaku Dosen Pembimbing Skripsi atas bimbingan dan saran yang telah diberikan. Serta yang turut membimbing dan memberi banyak masukan Ibu Ni Made Intan Putri Suari., ST., MT.
2. Bapak Juwari, S.T., M.Eng, Ph.D, selaku Kepala Departemen Teknik Kimia, FTI-ITS.
3. Bapak Fadlilatul Taufany, ST., Ph.D, selaku Sekretaris Departemen Teknik Kimia, FTI-ITS.
4. Bapak dan Ibu Dosen pengajar serta seluruh karyawan Departemen Teknik Kimia yang telah memberikan bimbingan selama masa perkuliahan.
5. Kedua orang tua, ayah-ibu, dan keluarga yang telah memberikan dukungan moril dan materiil, doa untuk kesuksesan serta jasa-jasa lain yang terlalu sulit untuk diungkapkan.
6. Teman seperjuangan di Laboratorium Elkimkor yang telah memberikan segala *support* dan kerjasamanya.



7. Teman-teman LJ Angkatan Gasal 2016 yang telah memberikan banyak *support* dan bantuan dalam menyelesaikan kesulitan-kesulitan selama pengerjaan.
8. Semua pihak yang telah membantu penyelesaian Laporan Skripsi ini yang tidak dapat disebutkan satu persatu.

Akhirnya, hanya kepada Allah penulis memohon semoga laporan skripsi ini dapat bermanfaat khususnya bagi penulis dan segenap pembaca pada umumnya.

Surabaya, Juli 2018

Penyusun

# DAFTAR ISI

HALAMAN JUDUL .....	i
HALAMAN JUDUL .....	ii
LEMBAR PENGESAHAN.....	iii
ABSTRAK.....	iv
ABSTRACT.....	vi
KATA PENGANTAR .....	viii
DAFTAR ISI.....	x
DAFTAR GAMBAR .....	xii
DAFTAR TABEL .....	xiv
BAB I PENDAHULUAN .....	1
I.1. Latar Belakang .....	1
I.2. Rumusan Masalah .....	3
I.3. Tujuan Penelitian.....	3
I.4. Manfaat Penelitian.....	3
BAB II TINJAUAN PUSTAKA .....	3
II.1. Magnetite ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ).....	5
II.2. <i>Graphene</i> .....	6
II.3. Komposit $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Graphene}$ .....	7
II.4. <i>Metal-Air Battery</i> dan <i>Zn-Air Battery</i> .....	8
II.5. Elektrokatalis pada <i>Zn-Air Battery</i> .....	12
II.6. Penelitian Terdahulu.....	13
BAB III METODE PENELITIAN .....	15
III.1. Deskripsi Proses Penelitian .....	15
III.2. Bahan dan Alat Penelitian .....	16
III.2.1. Bahan Penelitian .....	16
III.2.2. Alat Penelitian.....	16
III.3. Prosedur Penelitian .....	17
III.3.1. Sintesis $\text{Fe}_3\text{O}_4$ .....	17
III.3.2. Sintesis <i>Graphene-like</i> .....	19
III.3.3. Sintesis Komposit $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Graphene-like}$ .....	23
III.3.4. Uji Karakterisasi Sampel .....	25
III.3.5. Uji Performansi Elektrokatalis .....	26
BAB IV HASIL DAN PEMBAHASAN .....	29

IV.1. Karakterisasi Komposit $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Graphene-like}$ .....	29
IV.2. Performansi Elektrokatalis .....	40
BAB V KESIMPULAN DAN SARAN.....	48
V.1. Kesimpulan .....	49
V.2. Saran.....	49
DAFTAR PUSTAKA .....	xv
APPENDIKS .....	xix

## DAFTAR GAMBAR

<b>Gambar II.1</b>	Skema Pembuatan Komposit <i>Graphene/Metal Oxide</i> .....	7
<b>Gambar II.2</b>	Skema Konfigurasi <i>Metal-Air Battery</i> .....	9
<b>Gambar II.3</b>	Skema <i>Zn-Air Battery</i> .....	10
<b>Gambar III.1</b>	Diagram Alir Sintesis <i>Magnetite</i> ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ).....	17
<b>Gambar III.2</b>	Skema Alat Percobaan Sintesis $\text{Fe}_3\text{O}_4$ .....	18
<b>Gambar III.3</b>	Skema Rangkaian Elektroda pada Sintesis $\text{Fe}_3\text{O}_4$ .....	18
<b>Gambar III.4</b>	Diagram Alir Metode Kalsinasi.....	19
<b>Gambar III.5</b>	Diagram Alir Metode Hummer Termodifikasi .....	22
<b>Gambar III.6</b>	Diagram Alir Metode Reduksi .....	23
<b>Gambar III.7</b>	Diagram Alir Pembentukan Komposit $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Graphene-like}$ .....	24
<b>Gambar III.8</b>	Beadbug Microtube Homogenizer (a) dan <i>Zirconium Beads Microtube</i> (b) .....	24
<b>Gambar III.9</b>	(a) <i>Autolab Modular Potentiostats/Galvanostats</i> , (b) Motor RDE dan <i>Rotation Rate Control Box</i> , (c) <i>Platinum Electrode Tip</i> .....	28
<b>Gambar III.10</b>	Skema Uji Performansi Elektrokatalis .....	28
<b>Gambar IV.1</b>	Pola XRD <i>Graphene-like</i> , $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , dan Komposit $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Graphene-like}$ .....	29
<b>Gambar IV.2</b>	<i>Raman Spectra Graphene-like</i> .....	32
<b>Gambar IV.3</b>	Adsorpsi Desorpsi Isotermis $\text{N}_2$ dan Distribusi Pori Komposit $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Graphene-like}$ dengan Perbandingan $\text{Fe}_3\text{O}_4 : \text{Graphene-like}$ (a) 0,7 : 0,3 (b) 1 : 1 (c) 0,3 : 0,7 .....	35
<b>Gambar IV.4</b>	Morfologi Partikel $\text{Fe}_3\text{O}_4$ dengan Perbesaran (a) 5000 kali (b) 10000 kali dan <i>Graphene-like</i> dengan Perbesaran (c) 5000 kali (d) 10000 kali .....	37

<b>Gambar IV.5</b>	Morfologi Komposit $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Graphene-like}$ Perbesaran 5000 kali dengan Perbandingan $\text{Fe}_3\text{O}_4 : \text{Graphene-like}$ (a) 0,7 : 0,3 (b) 1 : 1 (c) 0,3 : 0,7 .....38
<b>Gambar IV.6</b>	Analisa EDX Komposit $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Graphene-like}$ dengan Komposisi $\text{Fe}_3\text{O}_4 : \text{Graphene-like}$ (a) 0,7 : 0,3 (b) 1 : 1 (c) 0,3 : 0,7.....40
<b>Gambar IV.7</b>	<i>Cyclic Voltammogram</i> $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , <i>Graphene-like</i> , dan Komposit $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Graphene-like}$ .....41
<b>Gambar IV.8</b>	<i>Linear Sweep Voltammogram</i> pada 1600 rpm42
<b>Gambar IV.9</b>	<i>Linear Sweep Voltammogram</i> dan <i>Koutecky-Levich Plot</i> (a), (b) $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , Komposit $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Graphene-like}$ dengan Perbandingan (c), (d) 0,7 : 0,3 (e), (f) 1 : 1 (g),(h) 0,3 : 0,7 (i),(j) <i>Graphene-like</i> .....44
<b>Gambar IV.10</b>	<i>Linear Polarization Curve</i> $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , <i>Graphene-like</i> , dan Komposit $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Graphene-like}$ .....46

## DAFTAR TABEL

<b>Tabel II.1</b>	Studi Hasil Penelitian Terdahulu.....	13
<b>Tabel III.1</b>	Komposisi Arang Tempurung Kelapa CV. Athma Multidaya Makmur .....	16
<b>Tabel IV.1</b>	<i>Surface Area, Average Pore Size, dan Total Pore Volume</i> Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> , <i>Graphene-like</i> , dan Komposit Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> / <i>Graphene-like</i> .....	34
<b>Tabel IV.2</b>	Jumlah Elektron yang Ditransfer ( <i>n</i> ) Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> , <i>Graphene-like</i> , dan Komposit Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> / <i>Graphene- like</i> .....	45

# BAB I

## PENDAHULUAN

### I.1. Latar Belakang

Perangkat penyimpanan dan konversi energi elektrokimia semakin meluas di kalangan masyarakat modern. Salah satu perangkat penyimpanan energi yang sedang menguasai pasar adalah baterai lithium (Li)-ion. Namun, *energy density* baterai Li-ion yang tidak mencukupi ( $200 - 250 \text{ Wh kg}^{-1}$ ) membatasi pengembangan dan aplikasinya lebih lanjut (Pan *et al.*, 2018). Oleh karena itu, inovasi teknologi baterai dibutuhkan untuk membangun sumber daya yang lebih baik bagi kebutuhan gaya hidup modern.

*Metal-air battery* merupakan salah satu inovasi perangkat penyimpanan energi yang memiliki *theoretical energy density* lebih baik daripada baterai Li-ion, sehingga dipertimbangkan sebagai solusi yang tepat untuk pengembangan baterai lebih lanjut (Pan *et al.*, 2018). *Metal-air battery* menghasilkan listrik melalui reaksi redoks antara logam pada anoda dan oksigen dari udara pada katoda berpori (Cheng, 2012). Beberapa keunggulan yang dimiliki oleh *metal-air battery* diantaranya *compact*, ringan, dan ekonomis karena menggunakan katoda yang menggantikan konstituen berat dan mahal pada baterai Li-ion (Pan *et al.*, 2018).

*Metal-air battery* dibedakan berdasarkan logam yang digunakan pada anoda, seperti Li, Zn, Al, dan Mg. Li-air dan Zn-air batteries merupakan yang paling menjanjikan. Meskipun Li-air battery ( $5200 \text{ Wh kg}^{-1}$ ) lebih unggul daripada Zn-air battery ( $1084 \text{ Wh kg}^{-1}$ ) ditinjau dari *theoretical energy density*, namun Li-air battery memiliki beberapa kekurangan, yaitu adanya potensi bahaya reaktivitas eksplosif dari lithium dengan udara atau air dan dapat menyalakan elektrolit organik yang mudah terbakar. Selain itu, lithium memiliki harga yang tinggi dan ketersediannya di alam sangat terbatas. Hal ini menjadi kendala komersialisasi Li-air battery dalam skala besar (Pan *et al.*, 2018).

Sebagai alternatif *Li-air battery*, digunakan *Zn-air battery* yang lebih aman digunakan pada *aqueous*, elektrolit yang tidak mudah terbakar, dan ketersediaannya yang sangat melimpah di alam (300 kali lebih banyak dari lithium). Selain itu, harganya yang murah dan ramah lingkungan menjadikannya sangat berpotensi untuk dikembangkan (Pan *et al.*, 2018).

Pada *Zn-air battery*, bagian terpenting dan paling kompleks adalah elektroda udara yang terdiri dari lapisan difusi gas dan elektrokatalis oksigen. Elektrokatalis memegang peranan penting karena menentukan performa elektroda *Zn-air battery*. Terdapat berbagai macam material yang dapat digunakan sebagai elektrokatalis katoda. *Noble metal* seperti Pt, saat ini memiliki daya tarik tinggi. Hal ini karena kestabilannya yang tinggi dan memiliki aktivitas katalitik yang sangat baik. Namun, kelangkaan dan harganya yang mahal menyebabkan perlunya dikembangkan material lain sebagai alternatif elektrokatalis yang memiliki performa sebaik Pt (Cheng, 2012).

Oksida logam transisi menjadi salah satu alternatif pengganti Pt karena kelimpahannya yang tinggi, harganya yang murah, dan ramah lingkungan (Cheng, 2012). Oksida logam transisi termasuk  $\text{Co}_3\text{O}_4$ ,  $\text{MnO}_2$  dan  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  telah terbukti memiliki aktivitas reaksi reduksi oksigen (*Oxygen Reduction Reaction*, ORR) dalam media alkalin. Namun, karena konduktivitas listrik dan aglomerasi selama operasi, terjadi degradasi dan membatasi aktivitas ORR. Untuk mengatasi keterbatasan tersebut, beberapa oksida logam transisi perlu dikombinasikan dengan berbagai bahan karbon seperti karbon aktif, karbon *nanotube*, dan *graphene*, dalam rangka meningkatkan konduktivitas listrik dan meningkatkan luas permukaan yang diperoleh (Chen *et al.*, 2017). Oleh karena itu, pada penelitian ini dilakukan sintesis komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{graphene-like}$  sebagai alternatif elektrokatalis pada katoda *Zn-air battery*.



## **I.2. Rumusan Masalah**

Dari uraian latar belakang di atas, maka dapat dirumuskan permasalahan sebagai berikut:

1. *Magnetite* ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ) memiliki sifat katalitik yang bagus namun sifat kelistrikan dan porositasnya rendah sehingga diperlukan material penunjang lain.
2. *Graphene-like* memiliki konduktivitas elektrik dan porositas yang baik namun kurang baik dalam hal aktivitas katalitik sehingga dapat dijadikan sebagai material penunjang bagi  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ .

## **I.3. Tujuan Penelitian**

Tujuan dari penelitian ini adalah untuk mengetahui pengaruh komposisi pencampuran  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{graphene-like}$  dalam aplikasinya sebagai elektrokatalis katoda pada *Zn-Air Battery*.

## **I.4. Manfaat Penelitian**

Manfaat yang akan diperoleh dalam penelitian ini antara lain sebagai berikut:

1. Menghasilkan material komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{graphene-like}$  dengan karakteristik fisik (porositas) dan performansi elektrokatalis yang baik.
2. Memberikan kontribusi pada pengaplikasian komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{graphene-like}$  sebagai elektrokatalis katoda pada *Zn-Air Battery* yang murah dan ramah lingkungan.

*(Halaman ini sengaja dikosongkan)*

## BAB II

### TINJAUAN PUSTAKA

#### II.1. Magnetite ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ )

Oksida besi merupakan senyawa kimia yang terdiri dari besi dan oksigen. Oksida besi tersebar luas di alam dan dapat dengan mudah disintesis di laboratorium. Oksida besi magnetik telah banyak diaplikasikan dalam kehidupan manusia, misalnya penerapan oksida besi nanopartikel (*Iron Oxide Nanoparticles*) sebagai agen kontras untuk diagnosa *in vitro*. Dalam dekade terakhir, sintesis oksida besi nanopartikel magnetik telah dikembangkan secara intensif tidak hanya untuk kepentingan ilmiah mendasar, tetapi juga untuk banyak aplikasi teknologi, seperti *targeted drug delivery*, *magnetic resonance imaging* (MRI), *magnetic hyperthermia* dan termoablasi, bioseparasi, dan biosensing. Bioaplikasi berdasarkan nanopartikel magnetik telah mendapat perhatian besar karena nanopartikel menawarkan keunggulan unik dibandingkan bahan lainnya, misalnya tidak mahal untuk diproduksi, stabil secara fisik dan kimia, biokompatibel, dan aman bagi lingkungan (Wu *et al.*, 2015).

Di antara banyak macam besi oksida, terdapat tiga macam besi oksida yang keberadaannya melimpah di alam, yaitu hematite ( $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ ), maghemite ( $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ ), dan magnetite ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ). Magnetite berbeda dari kebanyakan oksida besi lainnya karena mengandung ion  $\text{Fe}^{2+}$  dan  $\text{Fe}^{3+}$  (Movlaee *et al.*, 2017). Magnetite ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ) dengan luas permukaan spesifik yang tinggi juga memiliki potensi untuk diaplikasikan dalam katalis, superkapasitor, dan adsorben. Magnetite telah disintesis dengan beragam metode seperti *template*, solgel, mikroemulsi, hidrolisis, dan metode hidrotermal/solvothermal (Ma *et al.*, 2014).

Magnetite menunjukkan kilau logam dan warna hitam pekat buram. Densitas magnetite sebesar  $5,18 \text{ g/cm}^3$  yang sedikit lebih ringan dibandingkan hematite yang berwarna merah kecoklatan ( $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ ;  $5,26 \text{ g/cm}^3$ ), dan lebih berat dibandingkan *ferrihydrite* yang berwarna oranye kekuningan ( $\alpha\text{-FeOOH}$ ;  $4,26$

g/cm<sup>3</sup>). Besi murni ( $\alpha$ -Fe) memiliki densitas 7,87 g/cm<sup>3</sup>. Luas permukaan efektif magnetite bervariasi tergantung pada metode sintesis yang digunakan. Partikel skala mikro dengan diameter partikel sekitar 0,2  $\mu$ m memiliki luas permukaan sekitar 6 m<sup>2</sup>/g (Blaney, 2007).

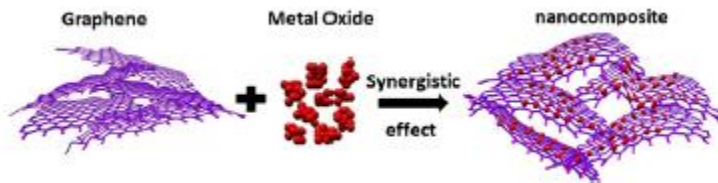
## II.2. Graphene

*Graphene* merupakan alotrop karbon dengan bentuk dua dimensi dan berikatan secara heksagonal. *Graphene* merupakan penyusun dasar dari alotrop karbon lainnya seperti grafit, arang, *carbon nanotubes* dan *fullerenes*. *Graphene* diinginkan karena fitur strukturalnya yang unik, menggabungkan area permukaan yang tinggi dengan sifat listrik yang sangat baik, yang menghasilkan area permukaan tinggi (teoritis, 2675 m<sup>2</sup>/g) dan listrik superior (mobilitas pembawa intrinsik 2000000 cm<sup>2</sup>/Vs) dan konduktivitas termal (~5000 W / mK). Struktur nanosheet 2D nya menciptakan permukaan yang mudah diakses dan lokasi aktif, menghasilkan kinetika reaksi cepat. Hal ini memungkinkan bahan penyimpanan energi untuk mencapai kepadatan energi dan daya yang tinggi (Kim *et al.*, 2017).

*Graphene* tidak hanya memiliki sifat elektronik yang unik, namun juga sifat mekanik, optik, termal dan elektrokimia yang sangat baik yang lebih unggul dari alotrop karbon lainnya seperti grafit, berlian, *fullerene* dan CNT. *Graphene* lapisan tunggal memiliki sifat mekanik yang sangat baik dengan modulus Young 1,0 TPa dan kekakuan 130 GPa, transmitansi optik 97,7% (menyerap 2,3% cahaya putih), dan konduktivitas termal unggul 5000 Wm<sup>-1</sup>K<sup>-1</sup> (sekitar 100 kali dari Cu). *Graphene* juga memiliki luas permukaan spesifik teoritis yang tinggi, konduktivitas listrik yang ekstrim dan fleksibilitas yang baik. Karena sifatnya yang unik, diperkirakan bahwa dalam banyak aplikasi *graphene* akan digunakan sebagai material individu atau sebagai komponen dalam bahan hibrid atau komposit (Wu *et al.*, 2012).

### II.3. Komposit $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Graphene}$

Pembuatan komposit *graphene* / *metal oxide* diharapkan menjadi metode yang efektif dan praktis untuk memaksimalkan potensi *graphene* dan oksida logam khususnya magnetite dalam *metal-air battery*. Tujuannya adalah untuk memaksimalkan penggunaan praktis dari gabungan keuntungan dari oksida logam dan *graphene* sebagai bahan aktif untuk memperbaiki penyimpanan energi elektrokimia, dan untuk menurunkan atau bahkan mengatasi masalah elektroda arus komponen individual dari *graphene* atau oksida logam sebagai bahan aktif. Dalam sebuah komposit, *graphene* menyediakan fungsionalitas dan kompatibilitas kimia untuk memudahkan pemrosesan oksida logam dalam komponen oksida logam komposit. Komponen oksida logam terutama memberikan kapasitas tinggi tergantung pada struktur, ukuran dan kristalinitasnya. Komposit yang dihasilkan bukan hanya jumlah komponen individual, melainkan komponen baru dengan fungsi dan karakteristik baru (Wu *et al.*, 2012).



**Gambar II.1** Skema Pembuatan Komposit *Graphene/Metal Oxide*

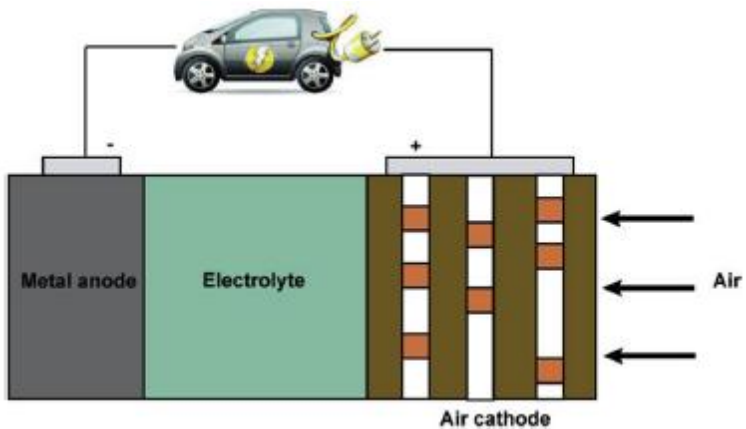
Komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{graphene}$  memiliki keuntungan dari masing-masing komponen untuk mencapai efek sinergisitas antara  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dan *graphene*.  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  berfungsi sebagai elektrokatalis, sedangkan *graphene* sebagai *support* karena memiliki porositas yang tinggi. Umumnya,  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{graphene}$  dapat disintesis dengan metode hidrotermal, solvotermal, dan kopresipitasi (Lv *et al.*, 2015).

#### II.4. Metal-Air Battery dan Zn-Air Battery

*Metal-Air Battery* merupakan salah satu sumber energi baru yang memiliki nilai energi yang tinggi dan dapat dimanfaatkan sebagai sumber energi pada barang-barang elektronik, transportasi listrik, dan sebagai tempat penyimpanan energi yang baik. Salah satu kelebihan dari *metal-air battery* adalah *energy density*-nya yang tinggi, yaitu sekitar 2 – 10 kali lipat lebih tinggi daripada *Li-ion battery*. Beberapa studi tentang *metal-air battery* yang telah dilakukan, di antaranya *Li-air*, *Na-air*, *Zn-air*, *Mg-air*, *Al-air*, dan *K-air batteries*. Hal inilah yang menyebabkan *metal-air battery* sangat berpotensi untuk dijadikan sumber energi pada kendaraan elektrik. Dari semua jenis *metal-air batteries*, *Li-air*, *Na-air*, *Zn-air*, *K-air batteries* merupakan yang dapat diisi ulang.

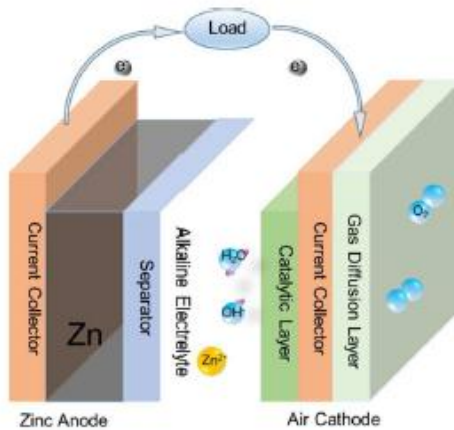
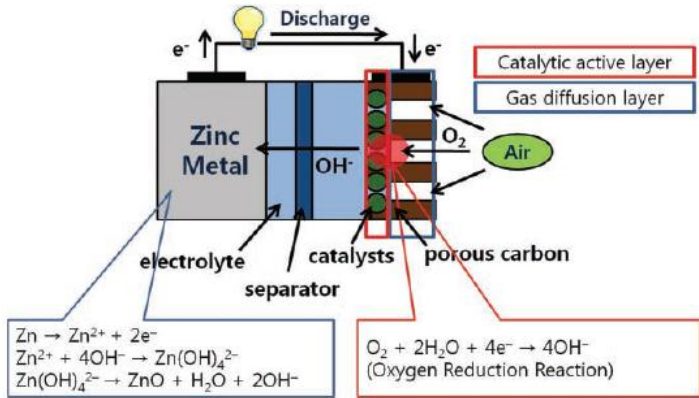
*Metal-air batteries* terdiri dari 4 komponen utama, yaitu anoda logam, elektrolit, separator, dan katoda udara. Separator adalah isolator yang hanya bisa memungkinkan transformasi ion. Dalam proses pelepasan (*discharge*), reaksi oksidasi terjadi pada anoda logam dengan logam yang dilarutkan dalam elektrolit dan reaksi reduksi oksigen (ORR) diinduksi di katoda udara. Karena konfigurasi baterai terbuka yang menggunakan udara sebagai reaktan, *metal-air batteries* memiliki kapasitas spesifik yang jauh lebih tinggi. Meskipun memiliki kepadatan energi yang tinggi, ada tantangan luar biasa dalam sistem ini yang harus di atasi sebelum digunakan secara praktis (Zhang *et al.*, 2016).

Di antara *metal-air batteries*, logam seperti Ca, Al, Fe, Cd, dan Zn cocok untuk sistem *aqueous*. *Zn-air battery* sangat berpotensi untuk digunakan sebagai peralatan penyimpan energi alternatif. Jika dibandingkan dengan Al, Al lebih mudah terkorosi dalam larutan alkalin meskipun memiliki *energy density* yang lebih tinggi. Zn memiliki beberapa keuntungan seperti harganya yang murah, kelimpahannya, potensial ekuilibrium rendah, ramah lingkungan, dan umurnya yang panjang. *Specific energy density* teoritis dari *Zn-air battery* sebesar 1084 Wh.kg<sup>-1</sup> (Lee *et al.*, 2011).



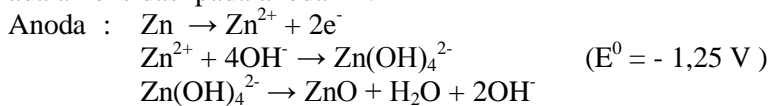
**Gambar II.2** Skema Konfigurasi *Metal-Air Battery*

*Zn-air battery* terdiri dari tiga bagian, yaitu logam Zn sebagai anoda, elektroda udara sebagai katoda, yang dibagi menjadi lapisan difusi gas dan lapisan aktif katalis, dan separator. Karena kelarutan oksigen sangat rendah pada tekanan atmosfer, maka perlu dilakukan penggunaan oksigen dalam fase gas, bukan cairan. Oksigen dari atmosfer berdifusi ke elektroda karbon berpori oleh perbedaan tekanan oksigen antara luar dan bagian dalam sel, kemudian katalis memfasilitasi pengurangan oksigen menjadi ion hidroksil dalam elektrolit alkali dengan elektron yang dihasilkan dari oksidasi logam Zn sebagai reaksi anoda. Inilah sebabnya mengapa proses ini disebut reaksi tiga fasa: katalisator (padat), elektrolit (cairan), dan oksigen (gas). Berdasarkan Gambar II.3 lingkaran merah merupakan tempat reaksi tiga fasa ini terjadi. Struktur ini menguntungkan perolehan oksigen pada *Zn-air battery*. Ion hidroksil yang dihasilkan bermigrasi dari katoda udara ke anoda Zn untuk melengkapi reaksi. Berikut ini reaksi yang terjadi pada anoda dan katoda dalam larutan alkalin.



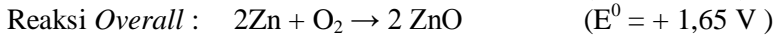
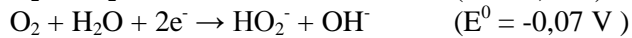
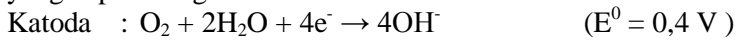
**Gambar II.3** Skema *Zn-Air Battery*

Reaksi yang terjadi selama operasi baterai (*discharge*) adalah oksidasi pada anoda Zn.





Reaksi yang terjadi pada katoda adalah reaksi reduksi oksigen, yang dapat mengikuti mekanisme 4 elektron atau 2 elektron.



*Zn-air battery* menggunakan logam Zn murni sebagai bahan aktif anoda. Oksidasi Zn terjadi saat *discharge*. Inilah sebabnya mengapa kebanyakan penelitian berfokus pada peningkatan elektroda udara, bukan anoda Zn. Separator pada *Zn-air battery* berfungsi untuk transportasi ion hidroksil,  $\text{OH}^-$ , dari elektroda udara ke elektroda Zn. Persyaratan dasar pemisah yang tepat adalah stabilitas dalam larutan alkali, ukuran pori dan porositas yang tepat, konduktivitas ionik yang tinggi dan *electrical non-conductivity*. Elektrolit alkali yang digunakan dalam *Zn-air battery* adalah kalium hidroksida, natrium hidroksida, dan litium hidroksida, semua dasar kecuali untuk  $\text{NH}_4\text{Cl}$  netral. KOH telah banyak digunakan di *Zn-air cells* karena konduktivitas ionik superior  $\text{K}^+$  ( $73,50 \Omega^{-1} \text{ cm}^2 / \text{equiv}$ ) dibandingkan dengan  $\text{Na}^+$  ( $50,11 \Omega^{-1} \text{ cm}^2 / \text{equiv}$ ). Selain itu, 30% KOH biasanya digunakan karena menunjukkan konduktivitas ion maksimum pada konsentrasi ini. Untuk mengurangi ketahanan elektrolit, meningkatkan konsentrasi KOH bisa menjadi solusi, namun konsentrasi KOH yang terlalu tinggi dapat menyebabkan peningkatan viskositas pada elektrolit. Selain itu, konsentrasi tinggi elektrolit menyebabkan pembentukan ZnO, sesuai dengan reaksi ( $\text{Zn}(\text{OH})_4^{2-} \rightarrow \text{ZnO} + \text{H}_2\text{O} + 2\text{OH}^-$ ), yang meningkatkan viskositas. Konsep penggunaan oksigen dalam *Zn-air battery* memerlukan elektroda udara untuk kedua katalis yang tepat untuk reaksi reduksi oksigen (ORR) dan struktur yang sangat berpori. Kedua persyaratan ini harus dipertimbangkan secara bersamaan untuk merancang elektroda udara. Katalis diperlukan untuk mengurangi energi aktivasi besar untuk ORR, namun struktur elektroda udara juga merupakan faktor penting yang mempengaruhi kinerja sel Zn. Sebenarnya, elektroda udara

bertindak hanya sebagai substrat di mana ORR terjadi. Mengingat keseluruhan reaksi *Zn-air battery* ( $2\text{Zn} + \text{O}_2 \rightarrow 2\text{ZnO}$ ), satu-satunya bahan yang dikonsumsi adalah logam Zn dan oksigen. Karena oksigen dipasok tanpa henti dari atmosfer, pada prinsipnya, elektroda udara itu sendiri dapat digunakan berulang kali kecuali ada kerusakan fisik seperti retak di katoda udara setelah keluar (Lee *et al.*, 2011).

## **II.5. Elektrokatalis pada *Zn-Air Battery***

Kinerja *Zn-air battery* sangat bergantung pada sepasang reaksi elektrokimia yang lamban pada katoda, yaitu, reaksi reduksi oksigen (*Oxygen Reduction Reaction*, ORR) dan reaksi evolusi oksigen (*Oxygen Evolution Reaction*, OER). Peningkatan aktivitas dan stabilitas ORR dan OER dapat dicapai dengan menggunakan logam mulia sebagai elektrokatalis. Elektrokatalis berbasis platinum merupakan ORR aktif, namun aktivitas OER terbatas karena pembentukan lapisan oksida pada potensial tinggi. Sebaliknya, elektrokatalis oksida Ir atau Ru adalah katalis OER yang efektif, namun tidak aktif seperti Pt untuk ORR. Masalah ini, seiring dengan biaya dan kelangkaan mahal atau logam mulia, merupakan tantangan besar bagi *Zn-air battery*. Oleh karena itu, pengembangan satu kinerja tinggi, elektrokatalis katalis non-logam dengan aktivitas ORR dan OER secara simultan (bifungsional) sangat dibutuhkan sebagai alternatif logam mulia. Katalis dikategorikan ke dalam empat kelompok yang berbeda: logam mulia, logam transisi non-mulia / oksida logam transisi, logam transisi dan bahan berbasis karbon (Davari and Ivey, 2018).

Elektrokatalis tidak hanya mencegah terjadinya reaksi samping tetapi juga mempercepat reaksi reduksi oksigen (ORR) dan reaksi evolusi oksigen (OER). ORR adalah reaksi reduksi oksigen yang masuk melalui pori – pori katoda yang kemudian digunakan untuk bereaksi dengan logam anoda membentuk oksida logam. Reaksi yang terjadi pada ORR secara umum adalah sebagai berikut:



Kebalikan dari ORR adalah OER dimana akan dihasilkan oksigen dari ion hidroksida yang kemudian digunakan untuk reaksi balik sel ketika dalam fase *charging*. Reaksi yang terjadi adalah sebagai berikut:



Elektrokatalis berperan meningkatkan *power density*, *cyclability*, dan efisiensi energi. Secara elektrokimia, oksida logam transisi aktif ( $\text{MnO}_2$ ,  $\text{Co}_3\text{O}_4$ ,  $\text{RuO}_2$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ,  $\text{NiO}$ ,  $\text{CuO}$ ,  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dan  $\text{Mn}_3\text{O}_4$ ) telah banyak dipelajari sebagai elektrokatalis. Di antara oksida logam transisi tersebut, magnetite ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ) sangat berpotensi untuk dijadikan sebagai elektrokatalis karena kelimpahannya, harganya yang murah, ramah lingkungan, dan memiliki konduktivitas elektrik yang tinggi (Lv *et al.*, 2015).

## II.6. Penelitian Terdahulu

**Tabel II.1** Studi Hasil Penelitian Terdahulu

No.	Peneliti	Judul	Hasil
1.	(Dewayanti and Meiditaharja, 2016)	Sintesis Partikel Magnetite dengan Metode Elektrokimia Menggunakan Multielektroda	Kondisi optimum sintesis magnetite : larutan elektrolit pH 9, 25 V dengan rangkaian zig zag selama 3 jam
2.	Pratama dan Izzati, 2017 (Pratama and Izzati, 2017)	Sintesis $\text{Fe}_3\text{O}_4$ dengan Metode Elektrokimia sebagai Elektrokatalis pada <i>Metal-Air Batteries</i>	Partikel magnetite kristal dapat digunakan sebagai elektrokatalis ORR pada <i>Metal-Air Battery</i> dengan <i>current density</i> terbesar $1,4 \times 10^{-5}$ A

3.	(Kartika, 2017)	<i>High Performance Electrocatalyst for Oxygen Reduction Reaction of Magnetite Nanoparticle-Based as a Cathode Metal-Air Battery</i>	Kapasitansi spesifik dan aktivitas elektrokatalis ORR tertinggi menggunakan KOH 0,6 M
4.	(Khadifah and Nurisal, 2017)	Sintesis <i>Graphene</i> Berbasis Arang Tempurung Kelapa dengan Metode Hummers Termodifikasi	Semakin besar ukuran arang, semakin besar kristalinitas. Kalsinasi meningkatkan luas permukaan partikel <i>graphene</i> .
5.	(Dewayanti, 2018)	Sintesis <i>Graphene</i> Berbasis Arang Tempurung Kelapa dengan Metode Hummer Termodifikasi dan Aplikasinya sebagai Katoda pada <i>Metal-Air Battery</i>	<i>Graphene-like</i> berhasil disintesis menggunakan metode kalsinasi, Hummer Termodifikasi, dan reduksi yang menghasilkan material berbentuk pipih dan berpori.

## BAB III

### METODE PENELITIAN

#### III.1. Deskripsi Proses Penelitian

Penelitian ini bertujuan untuk melakukan sintesis komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Graphene-like}$  dan mempelajari performanya sebagai elektrokatalis katoda pada *Zn-air battery*. Terdapat 4 tahapan utama yang dilakukan dalam penelitian ini, yaitu tahap sintesis  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , tahap sintesis *Graphene-like*, tahap sintesis komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Graphene-like}$ , dan tahap uji, yang meliputi uji karakteristik dan uji performansi elektrokatalis. Pada tahap pertama,  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  disintesis dengan metode elektrokimia menggunakan multielektroda. Elektrolit yang digunakan berupa air demin yang dikondisikan pada pH 9 dan digunakan potensial sebesar 25 V. Pada tahap kedua, *graphene-like* disintesis dengan metode kalsinasi-Hummer termodifikasi-reduksi. Kalsinasi dilakukan dengan bantuan aktivator KOH menggunakan *tubular furnace*. Hasil dari proses kalsinasi, dioksidasi dengan metode Hummer termodifikasi menggunakan beberapa oksidator, diantaranya  $\text{KMnO}_4$  dan  $\text{NaNO}_3$ , untuk menghasilkan *graphene* oksida. *Graphene* oksida yang terbentuk direduksi menjadi *graphene-like* menggunakan asam sitrat. Pada tahap ketiga, dilakukan sintesis komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Graphene-like}$  menggunakan *ball mill*. Tahap selanjutnya berupa pengujian terhadap sampel yang telah dihasilkan, yaitu partikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , *graphene-like*, dan komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Graphene-like}$ . Karakterisasi sampel yang dilakukan berupa uji kristalinitas, uji *surface area* dan *pore diameter*, serta uji morfologi, sedangkan performansi elektrokatalis diketahui melalui uji *Cyclic Voltammetry*, *Linear Sweep Voltammetry*, dan *Linear Polarization* dengan rangkaian setengah sel.

### III.2. Bahan dan Alat Penelitian

#### III.2.1. Bahan Penelitian

Bahan yang akan digunakan dalam penelitian ini adalah pelat besi bekas dengan ukuran 130 x 30 x 1 mm sebagai elektroda, arang tempurung kelapa yang diperoleh dari CV. Athma Multidaya Makmur, *demineralized water*, Natrium Nitrat ( $\text{NaNO}_3$ ) (SAP, distributor UD. SIP), Larutan Asam Sulfat ( $\text{H}_2\text{SO}_4$ ) 20% (98%, Mallinckordt, distributor Darmstadt Germany), Kalium Permanganat ( $\text{KMnO}_4$ ) (SAP, distributor UD. SIP), Kalium Hidroksida ( $\text{KOH}$ ) (Merck, distributor Darmstadt Germany), Larutan Asam Klorida ( $\text{HCl}$ ) 10% (37%, Mallinckordt, distributor Darmstadt Germany), *ice*, Larutan Asam Peroksida ( $\text{H}_2\text{O}_2$ ) (30%, Merck, distributor Darmstadt Germany), Larutan Amonium Hidroksida ( $\text{NH}_4\text{OH}$ ) 1 M (Merck, distributor Darmstadt Germany), Asam Sitrat ( $\text{C}_6\text{H}_8\text{O}_7 \cdot \text{H}_2\text{O}$ ) (SAP, distributor UD. SIP). *Polyvinylidenedifluoride* (PVdF), *N-Methylpyrrolidone* (NMP), Gas Oksigen dan Nitrogen (PT. Aneka Gas).

**Tabel III.1** Komposisi Arang Tempurung Kelapa CV. Athma Multidaya Makmur

Parameter	Persentase (%)
<i>Moisture content</i>	7,55
<i>Volatile matter</i>	2,82
<i>Ash content</i>	1,32
<i>Fix Carbon</i>	88,31

#### III.2.2. Alat Penelitian

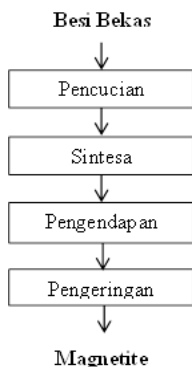
Alat yang digunakan dalam penelitian ini adalah *beaker glass*, *magnetic stirrer*, catu daya DC, pH meter, *petridish*, oven, neraca analitik, *Direct Current* (DC) 25 V (*GW Instek GPC-M Series*) sebagai sumber arus, mesin penggiling arang tempurung kelapa, ayakan, *tubular furnace* (Thermo scientific), *hot plate*, reaktor *stainless steel*, erlenmeyer, gelas ukur, corong kaca, pipet

volume, pipet tetes, pengaduk kaca, spatula, *freezer*, *muffle furnace*, dan *ball mill*.

### III.3. Prosedur Penelitian

#### III.3.1. Sintesis $\text{Fe}_3\text{O}_4$

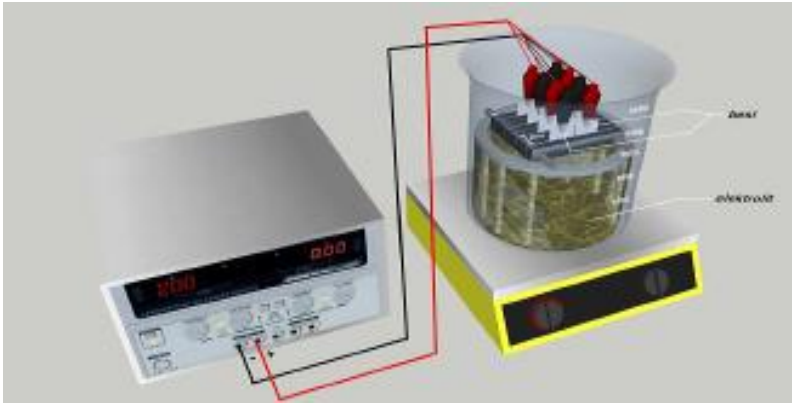
Pada penelitian ini, partikel *magnetite* ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ) disintesis dari larutan elektrolit air demin yang dikondisikan pada pH 9 dengan metode elektrokimia menggunakan multielektroda. Sebelum memulai proses sintesis, dilakukan pencucian elektroda besi dengan HCl. Sintesis dilakukan pada *beaker glass* 5 liter yang berisi larutan elektrolit. Larutan elektrolit berupa air demin yang ditambahkan NaOH 2 M untuk mengondisikan larutan pada pH 9. Volume larutan elektrolit yang digunakan sebanyak 2200 mL. Setelah merangkai alat berdasarkan skema alat percobaan, menyambungkan masing-masing elektroda besi menggunakan catu daya DC dengan beda potensial 25 V. Sintesis berlangsung dengan cara mengelektrolisa besi bekas selama 3 jam disertai pengadukan menggunakan *magnetic stirrer*. Endapan yang terbentuk pada larutan dan elektroda dipisahkan dan dikeringkan menggunakan oven bersuhu  $80^\circ\text{C}$  selama  $\pm 12$  jam. Setelah diperoleh serbuk  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , dilakukan uji karakterisasi.



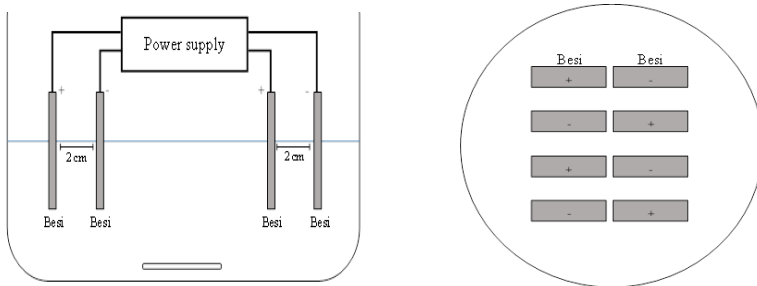
**Gambar III.1** Diagram Alir Sintesis *Magnetite* ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ )

Skema alat percobaan untuk sintesis  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dapat dilihat pada Gambar III.2. Total pelat besi yang digunakan sebanyak 8

pelat dengan dimensi pelat besi yang tercelup ke dalam larutan elektrolit sebesar 30 x 80 x 1 mm. Katoda dan anoda diletakkan berlawanan secara bergantian dengan jarak tiap pasang sebesar 2 cm dan jarak antar elektroda per pasang sebesar  $\pm 0,2$  cm. Skema konfigurasi rangkaian yang dipakai ditunjukkan oleh Gambar III.3.



**Gambar III.2** Skema Alat Percobaan Sintesis  $\text{Fe}_3\text{O}_4$

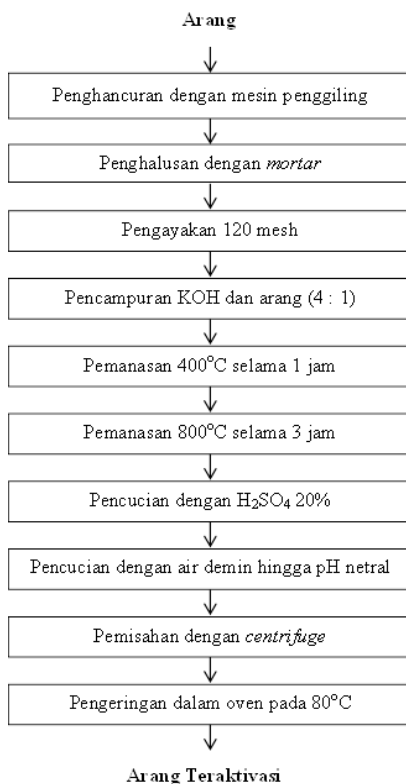


**Gambar III.3** Skema Rangkaian Elektroda pada Sintesis  $\text{Fe}_3\text{O}_4$



### III.3.2. Sintesis *Graphene-like*

Pada sintesis *graphene-like*, terdapat tiga tahapan sintesis yang dilakukan, yaitu aktivasi *raw material* dengan metode kalsinasi, sintesis *graphene* oksida dengan metode Hummer Termodifikasi, dan reduksi *graphene* oksida menjadi *Graphene-like*. Tahap aktivasi *raw material* dimulai dengan menimbang serbuk arang tempurung kelapa (*raw material*) yang telah dihancurkan menggunakan mesin penggiling dan dihaluskan menggunakan *mortar* serta diayak dengan penyaring berukuran 120 mesh.



**Gambar III.4** Diagram Alir Metode Kalsinasi

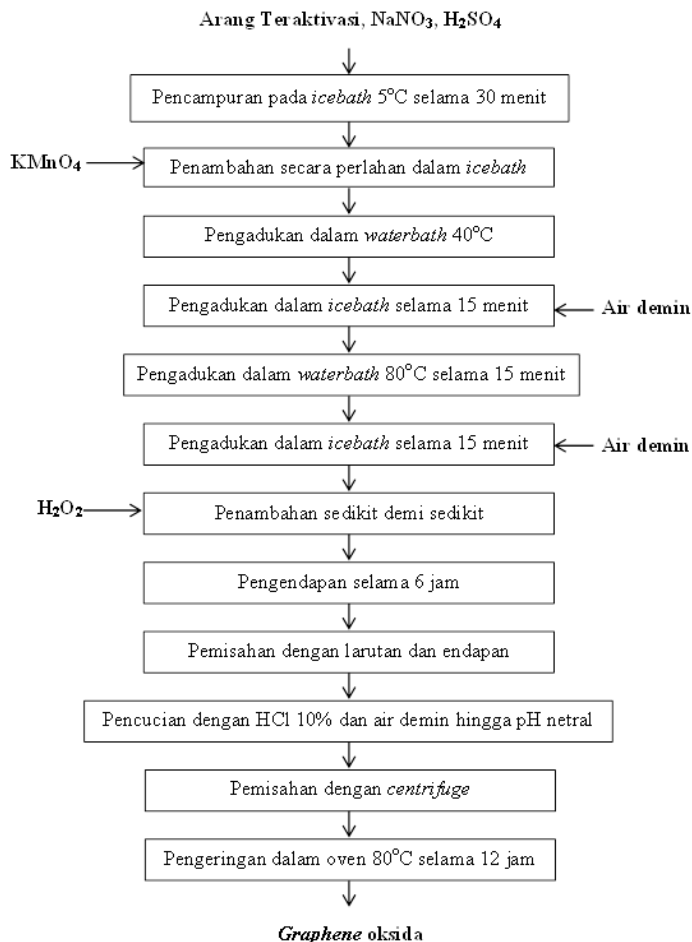
Metode kalsinasi dilakukan dengan menggunakan KOH padat sebagai agen aktivasi kimia. KOH padat dihancurkan menggunakan mortar dan alu kemudian dicampur dengan *raw material* dengan perbandingan massa KOH : *raw material* 4:1. Campuran KOH dan *raw material* kemudian dilakukan kalsinasi pada *furnace* dengan dialiri gas N<sub>2</sub>. Kalsinasi dilakukan pada temperatur 400°C selama 1 jam dan dilanjutkan pada temperatur 800°C selama 3 jam.

Selanjutnya, dilakukan pencucian menggunakan larutan H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 20% dan diaduk menggunakan *magnetic stirrer* selama 10 menit. Lalu, larutan dipindahkan ke dalam tabung *centrifuge*. Kemudian, larutan tersebut di-*centrifuge* selama 10 menit. Setelah larutan dan endapan terpisah (endapan akan mengendap di bagian bawah tabung *centrifuge*), larutan dipisahkan dari endapannya. Setelah larutan dikeluarkan dari tabung *centrifuge*, endapan yang masih ada di dalam tabung *centrifuge* dicuci kembali menggunakan air demin dan di-*centrifuge* kembali selama 10 menit (sampai pH netral). Setelah itu, larutan kembali dipisahkan dan endapan diletakkan di dalam *petridish*. Kemudian, endapan dikeringkan pada suhu 80°C selama 6 jam. Diagram alir tahap kalsinasi ditunjukkan oleh Gambar III.4.

Arang tempurung kelapa yang telah diaktivasi dengan metode kalsinasi, selanjutnya dioksidasi untuk membentuk *graphene* oksida dengan metode Hummer Termodifikasi. Tahapan yang dilakukan dalam metode Hummer Termodifikasi adalah sebagai berikut.

1. Merendam 2 gram arang tempurung kelapa yang telah dikalsinasi dan 2 gram NaNO<sub>3</sub> di dalam 92 mL larutan H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 98% dengan pengadukan selama 30 menit dalam *ice bath* yang dijaga suhunya antara 0-5°C di dalam ruang asam. Perendaman ini bertujuan untuk membentuk ikatan GIC-H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> sehingga karbon diharapkan lebih reaktif terhadap oksidator tetapi strukturnya tidak banyak berubah.

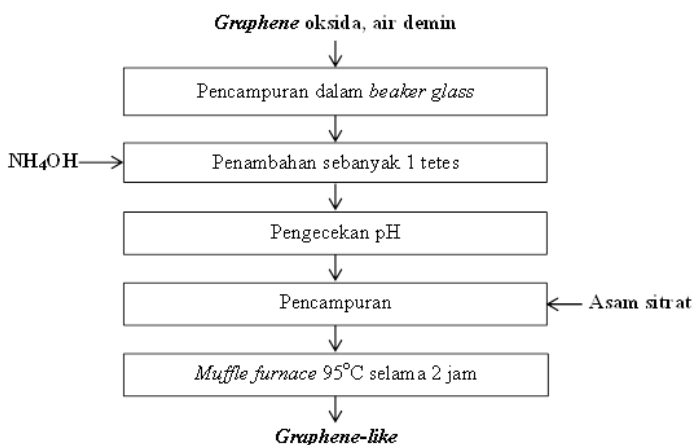
2. Menambahkan 10 gram kalium permanganat ( $\text{KMnO}_4$ ).  $\text{KMnO}_4$  berperan sebagai oksidator bersama dengan  $\text{H}_2\text{SO}_4$  dan  $\text{NaNO}_3$ .
3. Memindahkan ke dalam *waterbath* di dalam ruang asam dengan temperatur  $40^\circ\text{C}$ . Hal ini bertujuan untuk menaikkan temperatur operasi secara perlahan karena  $\text{KMnO}_4$  bereaksi dengan baik pada temperatur  $15^\circ\text{C}$ .
4. Setelah asap yang terbentuk hilang, memindahkan kembali sampel ke dalam *icebath* pada temperatur  $5^\circ\text{C}$ . Menambahkan 92 mL air demin dan melanjutkan pengadukan selama 15 menit. Air berperan dalam membantu pengelupasan tumpukan partikel *Graphene-like*.
5. Memindahkan kembali ke dalam *waterbath* dengan temperatur  $80^\circ\text{C}$  dan menjaga temperaturnya konstan selama 15 menit.
6. Menambahkan 200 mL air demin secara perlahan dan merendamnya dalam *icebath* selama 15 menit.
7. Menambahkan larutan asam peroksida ( $\text{H}_2\text{O}_2$ ) sedikit demi sedikit hingga tidak terbentuk gelembung (*bubbling*).  $\text{H}_2\text{O}_2$  berperan menghilangkan garam residu yang tersisa (untuk mengurangi sisa ion  $\text{MnO}_4$  dan  $\text{MnO}_2$  menjadi mangan sulfat terlarut).
8. Mendinginkan selama 6 jam untuk mengendapkan padatan.
9. Setelah 6 jam, memisahkan larutan bagian atas yang berwarna kuning kecoklatan dari bagian bawah yang berwarna lebih gelap.
10. Mencuci menggunakan larutan  $\text{HCl}$  10% untuk menghilangkan ion logam. Diaduk menggunakan *magnetic stirrer* selama 10 menit.
11. Memindahkan larutan sampel ke dalam tabung *centrifuge*. Mencuci dengan air demin hingga pH netral. Melakukan pemisahan dengan *centrifuge* selama 10 menit. Setelah larutan dan endapan terpisah (endapan akan mengendap di bagian bawah tabung *centrifuge*), memisahkan larutan dari endapannya.



**Gambar III.5** Diagram Alir Metode Hummer Termodifikasi

12. Setelah pH netral, memisahkan larutan dari endapan yang terbentuk. Meletakkan endapan dalam *petridish* dan mengeringkannya dalam oven pada suhu  $80^{\circ}\text{C}$  selama 12 jam.

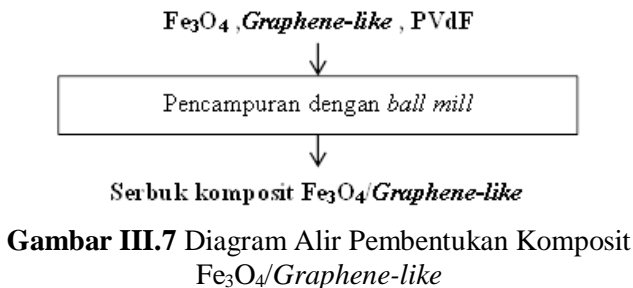
Reduksi *graphene* oksida menjadi *graphene-like* dilakukan secara kimia menggunakan asam sitrat. Sebanyak 20 mL air demin ditambahkan ke dalam 0,005 gram *graphene* oksida dalam *beaker glass*. Kemudian ditambahkan larutan  $\text{NH}_4\text{OH}$  1 M sebanyak 1 tetes. Melakukan pengecekan pH campuran larutan hingga pH berada pada rentang 9 – 10. Menambahkan asam sitrat sebanyak 4 gram. Selanjutnya memasukkannya ke dalam *muffle furnace* pada suhu  $95^\circ\text{C}$  selama 2 jam.



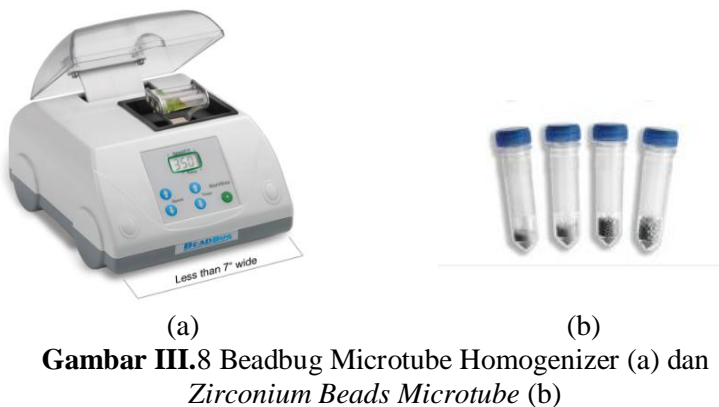
**Gambar III.6** Diagram Alir Metode Reduksi

### III.3.3. Sintesis Komposit $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Graphene-like}$

Pembuatan komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Graphene-like}$  dimulai dengan mencampur  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dan *Graphene-like* dengan perbandingan massa 0,7 : 0,3 ; 1 : 1 ; dan 0,3 : 0,7 serta menambahkan PVdF 10% berat dari total campuran. Pencampuran dilakukan menggunakan *ball mill* dengan kecepatan 3000 rpm selama 180 detik. Selanjutnya dilakukan uji karakteristik dan performansi elektrokatalis dari komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Graphene-like}$  yang terbentuk.



Pada sintesis komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ /*Graphene-like* ini *ball mill* digunakan untuk menyeragamkan (homogenisasi) ukuran partikel. *Ball mill* yang digunakan yaitu Beadbug Microtube Homogenizer dengan dimensi 17 x 21 x 13,5 cm dan berat 2,2 kg yang berkapasitas 3 x 2 mL *tube*. Kecepatannya dapat diatur dari 2700 rpm hingga 4000 rpm, sedangkan waktunya dapat diatur dari 3 detik hingga 3 menit. *Microtube* yang digunakan pada Beadbug Microtube Homogenizer ini dilengkapi dengan *Zirconium beads* berukuran 1 mm dengan kapasitas 2 mL. Adanya kecepatan getaran yang diaplikasikan menyebabkan *Zirconium beads* dalam *microtube* saling bertumbukan sehingga selain dapat mencampur juga dapat menyeragamkan ukuran partikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dan *Graphene-like*.



### III.3.4. Uji Karakterisasi Sampel

Partikel yang dihasilkan dari sintesis pada penelitian ini perlu dikarakterisasi untuk mengetahui karakteristik dari masing-masing partikel dan mengetahui pengaruh perbedaan komposisi partikel pada komposit terhadap karakteristiknya. Adapun beberapa karakterisasi yang dilakukan antara lain : *X-Ray Diffraction* (XRD; PANalytical, X'Pert Pro, The Netherlands), *Raman Spectroscopy* (Olympus, XploraPlus), *Surface Area Analyzer* (SAA; Quantachrom tipe NOVA 1200e), *Scanning Electron Microscopy* (SEM; FEI tipe Inspect S40), dan *Energy Dispersive X-Ray Spectroscopy* (EDX; EDAX AMETEK).

#### a. Karakterisasi Kristalinitas

*X-Ray diffraction* (XRD; PANalytical, X'Pert Pro, The Netherlands) digunakan untuk mengetahui struktur kristal sampel. Tiap puncak (*peak*) yang muncul pada pola XRD mewakili satu bidang kristal yang memiliki orientasi tertentu dalam sumbu tiga dimensi. Kemudian, pola difraksi yang berupa posisi dan intensitas relatif puncak difraksi dibandingkan dengan pola difraksi standar untuk mengetahui apakah bentuk material berupa amorf atau kristal.

*Raman Spectroscopy* (Olympus, XploraPlus) digunakan untuk mengetahui struktur kristal dari *graphene* yang ditunjukkan melalui *D-band*, *G-band*, dan *2D-band*. Berdasarkan rasio *D-band* dan *G-band* ( $I_D/I_G$ ) dapat diketahui level *defect* dari *graphene* yang menentukan kualitas *graphene* yang terbentuk.

#### b. Karakterisasi Luas Permukaan dan Distribusi Ukuran Pori

Karakteristik fisik berupa luas permukaan (*surface area*) ( $\text{m}^2/\text{g}$ ) dapat diketahui melalui analisa adsorpsi-desorpsi isothermis nitrogen pada 77 K menggunakan metode BET (Brunauer-Emmet-Teller) (Quantachrom tipe NOVA 1200e), sedangkan metode BJH (Barrett, Joyner, and Halenda) digunakan untuk mengetahui distribusi ukuran pori. Sebelum dilakukan pengukuran luas permukaan,

sampel di-*degasse* menggunakan aliran gas nitrogen pada temperatur 300°C selama 3 jam (untuk sampel *graphene-like*) dan temperatur 200°C selama 4 jam (untuk sampel Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> dan komposit Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/*graphene-like*) yang berfungsi untuk menghilangkan molekul-molekul air yang terperangkap di dalam sampel.

c. Karakterisasi Morfologi

Morfologi dari sampel dapat diketahui melalui analisa SEM (*Scanning Electron Microscopy*). Alat yang digunakan berupa SEM FEI tipe Inspect S 40. Alat ini bekerja dengan memfokuskan sinar elektron berenergi tinggi untuk menghasilkan difraksi sinar pada permukaan sampel. Difraksi ini menghasilkan sinyal yang berasal dari interaksi elektron dengan sampel sehingga dapat terlihat morfologi eksternalnya (tekstur). Sebelum dianalisa, sampel diletakkan pada pin SEM yang telah ditemplei *tape*, *tape* yang digunakan berupa *copper tape*.

Pada sampel komposit, dilakukan pula uji *Energy Dispersive X-Ray Spectroscopy* (EDX; EDAX AMETEK) untuk mengetahui komposisi komposit, yaitu komposisi unsur dalam sampel.

### III.3.5. Uji Performansi Elektrokatalis

Tahap preparasi sampel elektroda dilakukan dengan menambahkan *Polyvinylidenedifluoride* (PVdF), yang berfungsi sebagai perekat, ke dalam sampel dengan perbandingan massa sampel : PVdF = 10 : 1. Selanjutnya menambahkan *N-methyl-2-pyrrolidone* (NMP) ke dalam campuran sampel disertai dengan pengadukan hingga terbentuk pasta. NMP berfungsi sebagai *solvent*. Kemudian, mencetak pasta yang terbentuk di atas *platinum electrode tip* RDE dan mengeringkannya dalam oven dengan temperatur 80°C selama 20 menit.

Performansi elektrokatalis dievaluasi menggunakan teknik *Rotating Disk Electrode* (RDE), yaitu melalui uji *Cyclic Voltammetry* (CV), *Linear Sweep Voltammetry* (LSV) dan *Linear*



*Polarization* (LP) menggunakan *Autolab Modular Potentiostats/Galvanostats* (*Autolab PGSTAT 302N*). Sampel elektrokatalis yang telah dibuat digunakan sebagai *working electrode*. Platina (Pt) digunakan sebagai *counter electrode* untuk pengukuran elektrokimia, sedangkan *reference electrode* yang digunakan adalah Ag/AgCl. Larutan elektrolit yang digunakan berupa larutan KOH 0,6 M pada kondisi jenuh oksigen. Penjenuhan larutan dilakukan dengan mengalirkan gas oksigen ke dalam labu uji melalui dua cara. Pertama, mengalirkan gas oksigen secara langsung ke dalam larutan elektrolit KOH 0,6 M pada 15 – 20 menit awal. Selanjutnya, dilakukan penjenuhan secara tidak langsung dengan melewati gas oksigen ke dalam *trap* kemudian menuju ruang dalam labu uji.

a. Uji *Cyclic Voltammetry* (CV)

Uji *Cyclic Voltammetry* (CV) berfungsi untuk mengetahui adanya reaksi reduksi oksigen yang ditunjukkan oleh terbentuknya *peak* pada daerah katodik. Pengujian dilakukan pada rentang potensial -0,8 hingga 0,8 V (vs Ag/AgCl), *scan rate* 0,1 V/s, dan kecepatan putar motor RDE 1600 rpm pada temperatur ruang.

b. Uji *Linear Sweep Voltammetry* (LSV)

Uji *Linear Sweep Voltammetry* (LSV) berfungsi untuk mengetahui mekanisme transfer elektron yang terjadi pada sampel elektrokatalis. Pengujian dilakukan pada rentang potensial -0,8 hingga 0,5 V (vs Ag/AgCl) dan *scan rate* 0,005 V/s pada temperatur ruang. Kecepatan putar motor RDE divariasikan dari 400 rpm hingga 2000 rpm.

c. Uji *Linear Polarization* (LP)

Uji *Linear Polarization* (LP) berfungsi untuk mengkonfirmasi terjadinya reaksi reduksi oksigen pada sampel elektrokatalis. Pengujian dilakukan pada rentang potensial -1,2 hingga 1,2 V, *scan rate* 0,1 V/s, dan kecepatan putar 1600 rpm pada temperatur ruang.



(a)

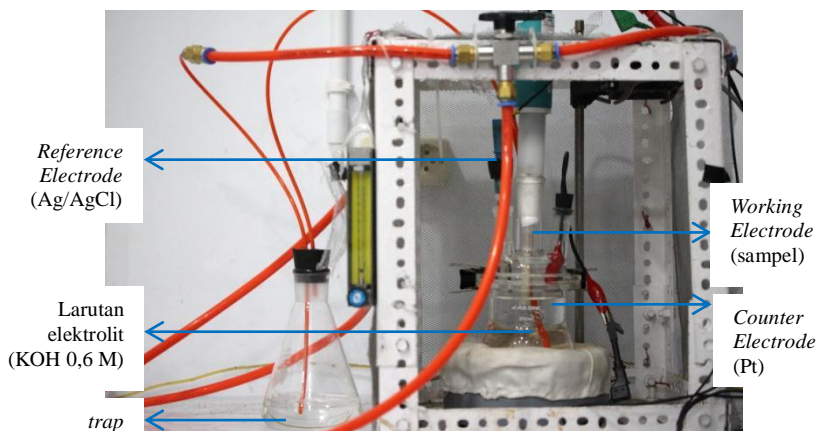


(b)



(c)

**Gambar III.9** (a) *Autolab Modular Potentiostats/Galvanostats*, (b) *Motor RDE dan Rotation Rate Control Box*, (c) *Platinum Electrode Tip*

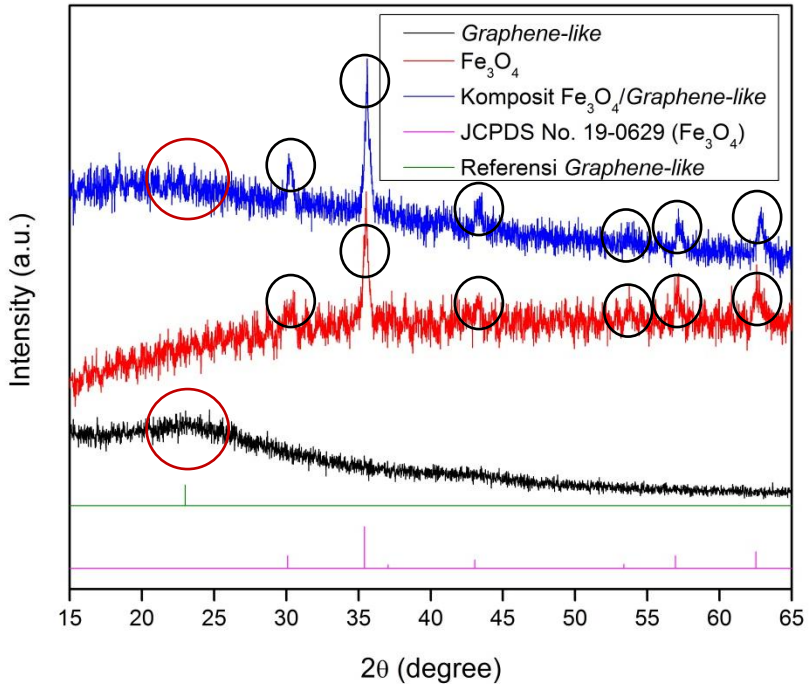


**Gambar III.10** Skema Uji Performansi Elektrokatalis

## BAB IV

### HASIL DAN PEMBAHASAN

#### IV.1. Karakterisasi Komposit $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Graphene-like}$



**Gambar IV.1** Pola XRD *Graphene-like*,  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , dan Komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Graphene-like}$

Gambar IV.1 menunjukkan pola XRD *graphene-like*,  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , dan komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{graphene-like}$ . Pola XRD *graphene-like* menunjukkan bahwa terbentuk *peak* pada  $2\theta = 23,1$  yang mengindikasikan telah terjadinya reduksi dari GO menjadi *graphene* (Huo *et al.*, 2013). Terbentuknya *graphene-like* juga dikonfirmasi oleh *Raman spectra* yang ditunjukkan oleh Gambar IV.2. Terdapat dua *peak* utama, yaitu D-band dan G-band. D-

*band* merupakan *band* yang tidak teratur yang berasal dari cacat struktural, efek tepi, dan ikatan karbon  $sp^2$  yang merusak simetri. Sedangkan *G-band* berkaitan dengan gerakan peregangan bidang antara atom karbon  $sp^2$  (Dubale, Su and Tamirat, 2014). *D-band* menunjukkan level *defect*, sedangkan *G-band* dan *2D-band* umumnya digunakan untuk menentukan ketebalan *layer graphene*. Posisi *peak D* dan *G* ditentukan melalui *Lorentzian fit*. Dari hasil *fitting* didapatkan posisi *peak D-band* dan *G-band* pada  $1360,16\text{ cm}^{-1}$  dan  $1587,49\text{ cm}^{-1}$ . Didapatkan rasio intensitas *D-band* dan *G-band* ( $I_D/I_G$ ) *graphene-like* sebesar 0,56. Rasio  $I_D/I_G$  yang rendah menunjukkan semakin rendah *defect* (Aliofkhazraei *et al.*, 2016). Terjadinya *defect* atau cacat pada *graphene-like* tidak dapat terhindarkan selama proses sintesis. Penggunaan berbagai oksidator dan temperatur menyebabkan terjadinya *defect*. Berbagai jenis *defect* dapat mengubah topologi atau kelengkungan dan kemudian mengubah struktur *graphene-like*. Terdapat dua macam *defect*, yaitu *defect* intrinsik (*intrinsic defect*) dan *defect* ekstrinsik (*introduced defect*). *Defect* intrinsik, salah satunya disebabkan oleh rotasi sepasang atom karbon, sehingga menghasilkan pasangan yang berdekatan dari cincin pentagonal dan heptagonal. Oleh karena itu, pembentukan cacat tidak menghasilkan pengantar atau penghilangan atom karbon atau ikatan menjuntai. *Defect* ekstrinsik, salah satunya disebabkan adanya gugus-gugus fungsi yang menempel pada permukaan *graphene-like* selama sintesis. Hal ini menyebabkan gugus-gugus tersebut terikat dengan atom karbon terdekat dengan ikatan kovalen atau interaksi lemah van der Waals (Tian *et al.*, 2017).

Adanya *defect* berpengaruh pada properti yang dimiliki *graphene-like*, salah satunya pada properti elektrik. *Defect* intrinsik membentuk pusat hamburan elektron pada permukaan *graphene-like*. Hal ini berpengaruh pada transfer elektron yang menyebabkan turunnya konduktivitas. Semakin kecil *defect* intrinsik ini maka semakin baik konduktivitas *graphene-like*. Sedangkan pada *defect* ekstrinsik, adanya *defect* atom oksigen,

seperti C-O-C, dapat membuat *graphene-like* mendukung logam konduktif sehingga semakin besar *defect* ekstrinsik maka semakin baik konduktivitas *graphene-like* (Tian *et al.*, 2017).

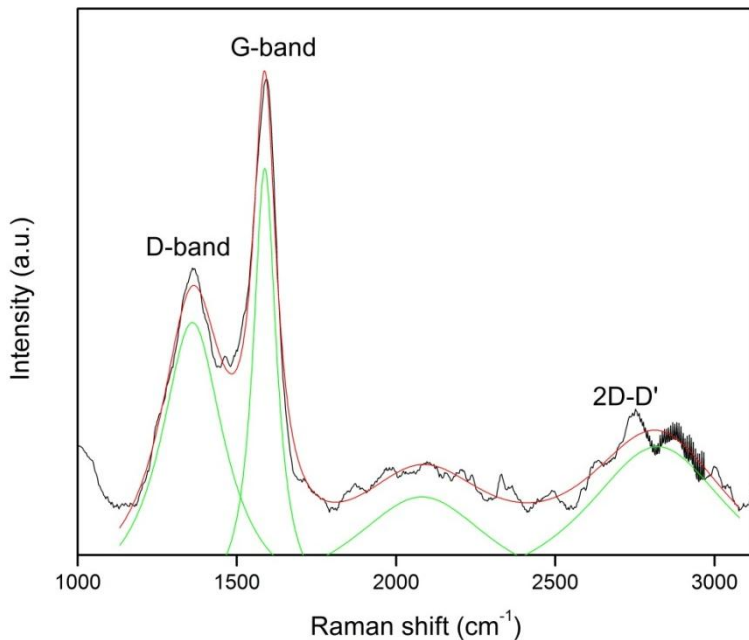
*Graphene-like* hasil sintesis yang memiliki *defect ratio* rendah menunjukkan bahwa *defect* yang terjadi adalah *defect* intrinsik karena performansinya yang cukup bagus meskipun dengan *defect ratio* rendah. Namun hal ini tidak dapat teridentifikasi melalui *Raman Spectra*. Secara komersial, *graphene* dengan merk dagang Nanene memiliki *defect ratio* ( $I_D/I_G$ ) sebesar 0,3. *Broad peak* pada 2D-band menunjukkan bahwa *graphene-like* yang terbentuk memiliki lebih dari satu layer (*multilayer graphene*) (Wu, Shen and Yu, 2014).

Pada pola XRD  $Fe_3O_4$  yang ditunjukkan oleh Gambar IV.1, *peak* yang terbentuk telah bersesuaian dengan standar data XRD untuk  $Fe_3O_4$  (JCPDS No. 19-0629), yaitu pada  $2\theta = 30,09$  ;  $35,42$  ;  $37,05$ ;  $43,05$  ;  $53,39$  ;  $56,94$  ;  $62,51$  dan  $65,74^\circ$ . *Peak* pada  $2\theta = 37,05^\circ$  sangat rendah sehingga dapat diabaikan. Terbentuknya *peak* yang tajam (*peak* dengan intensitas tertinggi) pada  $2\theta = 35,42$  mengonfirmasi pembentukan  $Fe_3O_4$  dengan kristalinitas yang tinggi (Krishna *et al.*, 2016). Pada pola XRD komposit  $Fe_3O_4/graphene-like$ , baik *peak*  $Fe_3O_4$  maupun *graphene-like* muncul pada komposit yang menunjukkan telah terbentuknya komposit yang baik antara  $Fe_3O_4$  dengan *graphene-like* (Krishna *et al.*, 2016). Ukuran kristal yang terbentuk dihitung dengan Persamaan Scherrer,

$$d_{\text{crystallite}} = \frac{0,9 \lambda}{B \cos \theta} \quad (1)$$

dimana  $\lambda$  adalah *X-Ray Wavelength* dan B adalah *full width half max* (FWHM). Berdasarkan hasil perhitungan didapatkan  $d_{\text{crystallite}}$   $Fe_3O_4$  sebelum dikompositkan sebesar 52,12 nm, sedangkan setelah dikompositkan menjadi 51,24 nm. Ukuran kristal yang hampir sama ini menunjukkan bahwa tidak terjadi perubahan kristalinitas akibat pengompositan. Pada komposit, *peak-peak* yang bersesuaian dengan  $Fe_3O_4$  terlihat lebih tajam karena proses

*milling* menyebabkan orientasi dari bidang kristal masing-masing lebih tampak.



**Gambar IV.2** *Raman Spectra Graphene-like*

Untuk mengetahui luas permukaan, ukuran dan volume pori *graphene-like*,  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , dan komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{graphene-like}$ , dilakukan uji adsorpsi desorpsi isothermis menggunakan metode Brunauer-Emmett-Teller (BET). Tabel IV.1 menunjukkan hasil pengujian *surface area*, *average pore size*, dan *total pore volume* *graphene-like*,  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , dan komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{graphene-like}$ . Berdasarkan hasil uji BET, *graphene-like* yang sintesis dengan metode kalsinasi - Hummer termodifikasi – reduksi mampu menghasilkan *surface area* sebesar  $663,955 \text{ m}^2/\text{g}$  dengan volume pori sebesar  $1,022 \text{ cm}^3/\text{g}$ . Hasil ini lebih besar dibandingkan dengan penelitian yang telah dilakukan oleh Kim *et al.* pada 2014 dengan *surface area* sebesar  $278,3 \text{ m}^2/\text{g}$  dan volume pori

sebesar  $0,921 \text{ cm}^3/\text{g}$  (Kim *et al.*, 2014). Sedangkan  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  hasil sintesis secara elektrokimia menggunakan multielektroda mampu menghasilkan *surface area* sebesar  $105,045 \text{ m}^2/\text{g}$ . Hasil ini lebih besar dibandingkan dengan penelitian yang telah dilakukan oleh Dewayanti dan Meiditaharja pada 2016 yang menghasilkan *surface area*  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  sebesar  $13,298 \text{ m}^2/\text{g}$  (Dewayanti and Meiditaharja, 2016). Ketika berada dalam bentuk komposit, semakin banyak *graphene-like* maka semakin besar *surface area*. Hal ini dikarenakan tingginya *surface area graphene-like* yang mencapai 6 kali lipat *surface area*  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ . Dalam bentuk komposit, *surface area* yang dihasilkan sangat bergantung pada komposisi massa  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dan *graphene-like*. Namun, terjadi penyimpangan pada perbandingan  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dan *graphene-like* =  $0,7 : 0,3$ . Hal ini mungkin disebabkan oleh kurang homogennya pencampuran yang terjadi dan kurang meratanya persebaran  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  sehingga pada saat pengambilan sampel untuk uji luas permukaan, sampel yang terambil didominasi oleh *graphene-like* yang menyebabkan lebih banyak luas permukaan *graphene-like* yang terbaca.

Apabila ditinjau dari ukuran pori, ukuran pori  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , *graphene-like*, dan komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{graphene-like}$  berada pada rentang  $5,1 - 17,4 \text{ nm}$ . Berdasarkan klasifikasi IUPAC, ukuran pori  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , *graphene-like*, dan komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{graphene-like}$  termasuk ke dalam mesopori ( $2 - 50 \text{ nm}$ ). Dalam aplikasinya sebagai katoda pada *Zn-air battery*, ukuran partikel mesopori dikehendaki agar molekul  $\text{O}_2$  dapat masuk ke dalam pori dan bereaksi dengan baik.

**Tabel IV.1** Surface Area, Average Pore Size, dan Total Pore Volume Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>, Graphene-like, dan Komposit Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/Graphene-like

Sampel	Surface Area (m <sup>2</sup> /g)	Average Pore Size (nm)	Total Pore Volume (cm <sup>3</sup> /g)
K1	105,045	17,4470	0,4582
K2	439,430	6,8367	0,7511
K3	393,643	5,9474	0,5853
K4	542,410	5,1173	0,6939
K5	663,955	6,1584	1,0220

Keterangan :

K1 = Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> : Graphene-like = 1 : 0

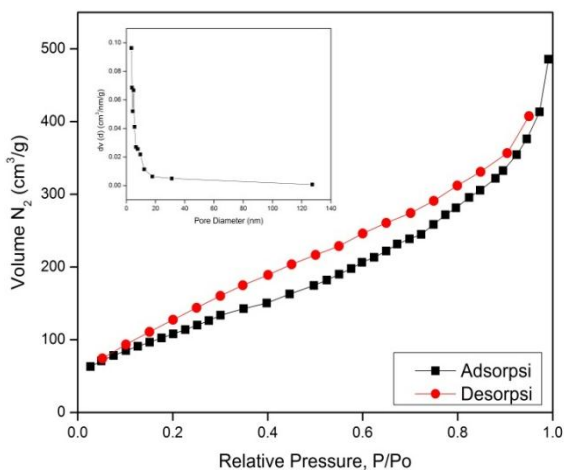
K2 = Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> : Graphene-like = 0,7 : 0,3

K3 = Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> : Graphene-like = 1 : 1

K4 = Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> : Graphene-like = 0,3 : 0,7

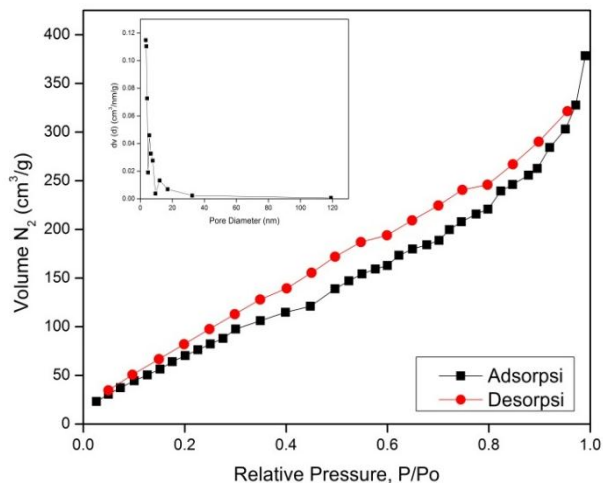
K5 = Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> : Graphene-like = 0 : 1

a)

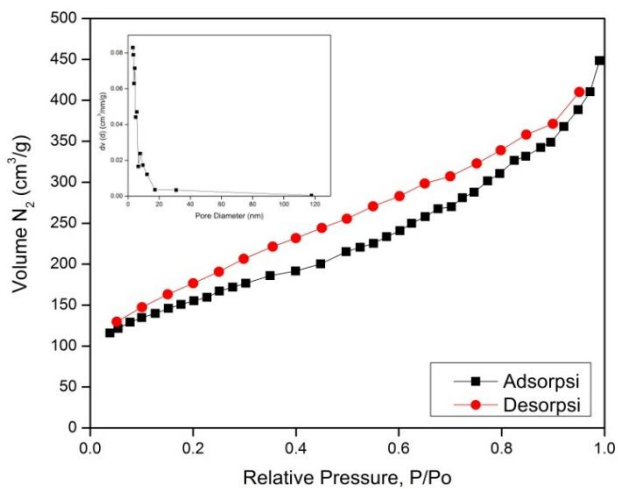




b)



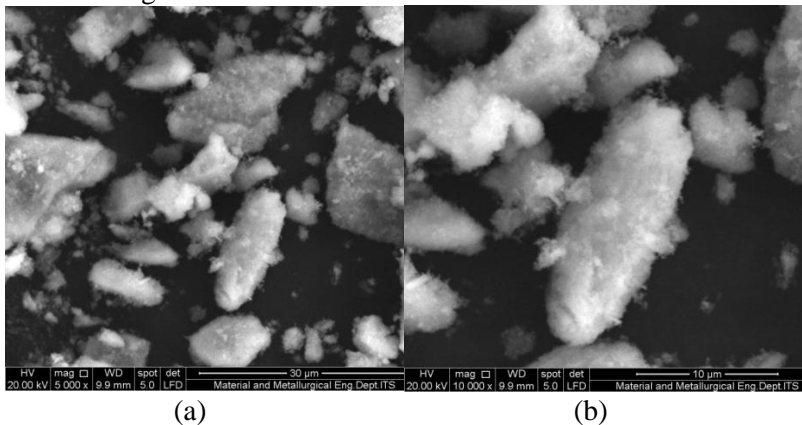
c)

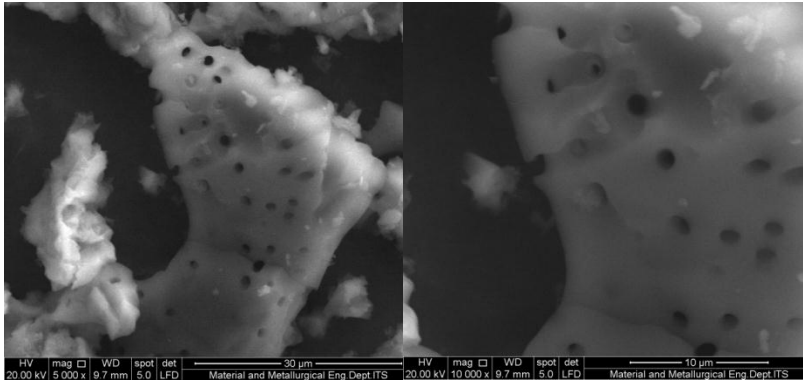


**Gambar IV.3** Adsorpsi Desorpsi Isotermis N<sub>2</sub> dan Distribusi Pori Komposit Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/Graphene-like dengan Perbandingan Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> : Graphene-like (a) 0,7 : 0,3 (b) 1 : 1 (c) 0,3 : 0,7

Gambar IV.3 menunjukkan kurva adsorpsi desorpsi isothermis  $N_2$  dan distribusi ukuran pori dari komposit  $Fe_3O_4/Graphene-like$  dengan perbandingan massa  $Fe_3O_4 : Graphene-like$  (a) 0,7 : 0,3 (b) 1 : 1 (c) 0,3 : 0,7. Kurva isothermis yang dihasilkan mengikuti pola tipe IV dengan *hysteresis loop* pada range 0,02 – 0,99 P/ $P_0$  yang menunjukkan terbentuknya mesopori (Ma *et al.*, 2014). Hal ini dikarenakan histeresis yang muncul dikaitkan dengan kondensasi kapiler dalam struktur mesopori. Histeresis yang terbentuk termasuk ke dalam tipe H3, yang tidak menunjukkan adanya adsorpsi pembatas pada P/ $P_0$  tinggi. Tipe H3 ini digambarkan sebagai suatu agregat dari partikel seperti piring yang menimbulkan pori-pori berbentuk celah (Sing *et al.*, 1985).

Untuk mengetahui morfologi dari *graphene-like*,  $Fe_3O_4$ , dan komposit  $Fe_3O_4/graphene-like$ , dilakukan uji SEM. Hasil uji SEM partikel  $Fe_3O_4$  dan *graphene-like* ditunjukkan oleh Gambar IV.4. Berdasarkan Gambar IV.4, partikel  $Fe_3O_4$  yang terbentuk memiliki ukuran dan bentuk yang tidak seragam. Begitu juga dengan partikel *graphene-like* yang memiliki ukuran yang tidak seragam. Terlihat bahwa partikel *graphene-like* hasil sintesis memiliki bentuk yang pipih namun tidak beraturan. Pori yang terbentuk dapat teramati dengan jelas melalui hasil uji SEM ini. Pori tersebar hampir merata pada permukaan partikel dengan ukuran seragam.



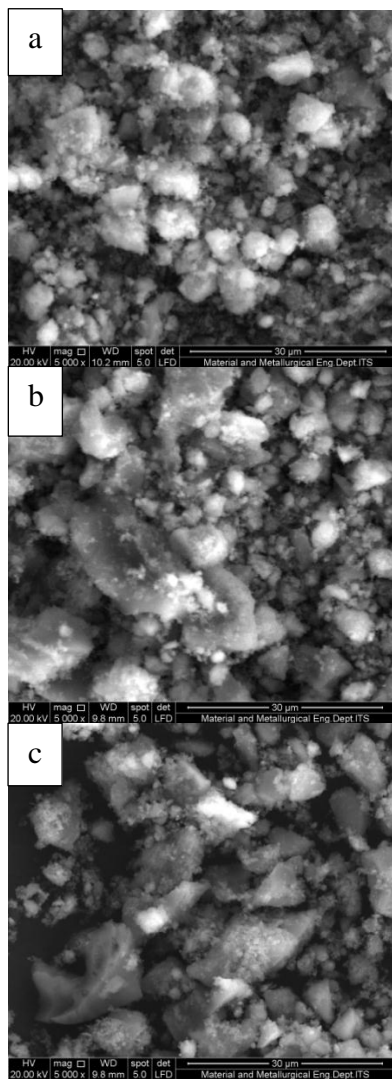


(c)

(d)

**Gambar IV.4** Morfologi Partikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dengan Perbesaran (a) 5000 kali (b) 10000 kali dan *Graphene-like* dengan Perbesaran (c) 5000 kali (d) 10000 kali

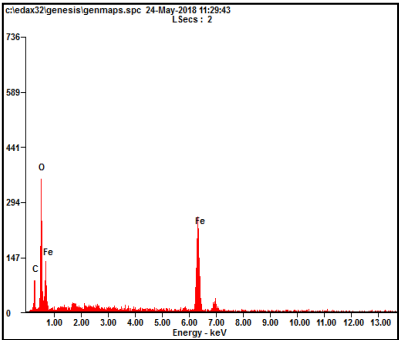
Dalam bentuk komposit, morfologi dan persebaran partikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dan *graphene-like* dapat terlihat dari hasil uji SEM yang ditunjukkan oleh Gambar IV.5. Berdasarkan Gambar IV.5, partikel yang terlihat seperti lempengan lebih besar diidentifikasi sebagai *graphene-like*, sedangkan partikel kecil yang menempel pada permukaannya diidentifikasi sebagai  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ . Semakin banyak partikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dalam komposit maka permukaan partikel *graphene-like* yang tertutupi semakin besar. Hal ini terlihat pada Gambar IV.4 (a) dengan perbandingan  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  : *graphene-like* = 0,7 : 0,3, hampir seluruh permukaan partikel *graphene-like* tertutupi oleh  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , sedangkan pada Gambar IV.5 (c) dengan perbandingan  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  : *graphene-like* = 0,3 : 0,7, persebaran  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  sangat tidak merata. Hal ini dapat terlihat jelas dari adanya permukaan partikel *graphene-like* yang sama sekali tidak tertutupi oleh  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ .



**Gambar IV.5** Morfologi Komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Graphene-like}$  Perbesaran 5000 kali dengan Perbandingan  $\text{Fe}_3\text{O}_4 : \text{Graphene-like}$  (a) 0,7 : 0,3 (b) 1 : 1 (c) 0,3 : 0,7

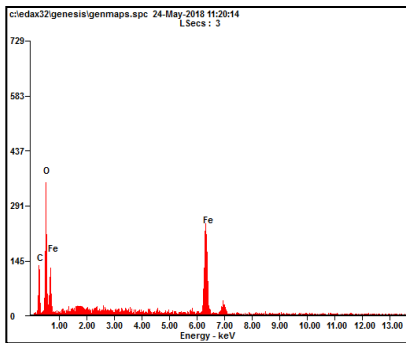
Berdasarkan hasil uji SEM, dilakukan pula perhitungan distribusi ukuran partikel. Mayoritas partikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  yang terbentuk memiliki ukuran antara 2,01 – 4  $\mu\text{m}$ , sedangkan partikel *graphene-like* yang terbentuk memiliki ukuran antara 21 – 40  $\mu\text{m}$ . Setelah dikompositkan, terjadi penyeragaman ukuran menjadi 2,01 – 4  $\mu\text{m}$  pada semua perbandingan komposisi komposit. Ukuran partikel berpengaruh pada performanya ketika diaplikasikan sebagai elektrokatalis. Semakin kecil partikel, maka konduktivitas elektriknya semakin baik sehingga performa elektrokatalisnya juga semakin baik.

Adanya partikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dan *graphene-like* dalam komposit, dikonfirmasi menggunakan analisa EDX. Berdasarkan hasil analisa EDX yang ditunjukkan oleh Gambar IV.6, telah muncul *peak* C, O dan Fe. Adanya *peak* yang intens untuk Fe bersama dengan *peak* C dan O menunjukkan penggabungan partikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  pada *graphene-like* (Namazi, 2014). Berdasarkan persentase massanya, semakin banyak *graphene-like* dalam komposit maka semakin besar persentase unsur C. Hal ini berlaku pula untuk  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ .



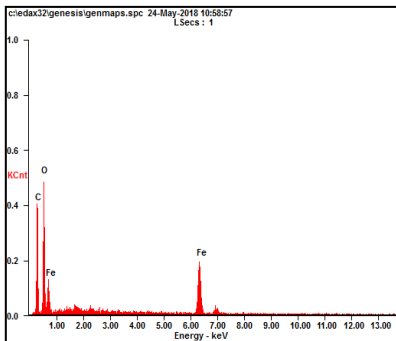
a

Unsur	Persentase Massa
	(%)
C	11,67
O	31,14
Fe	57,19



b

Unsur	Persentase Massa (%)
C	17,94
O	29,03
Fe	53,03



c

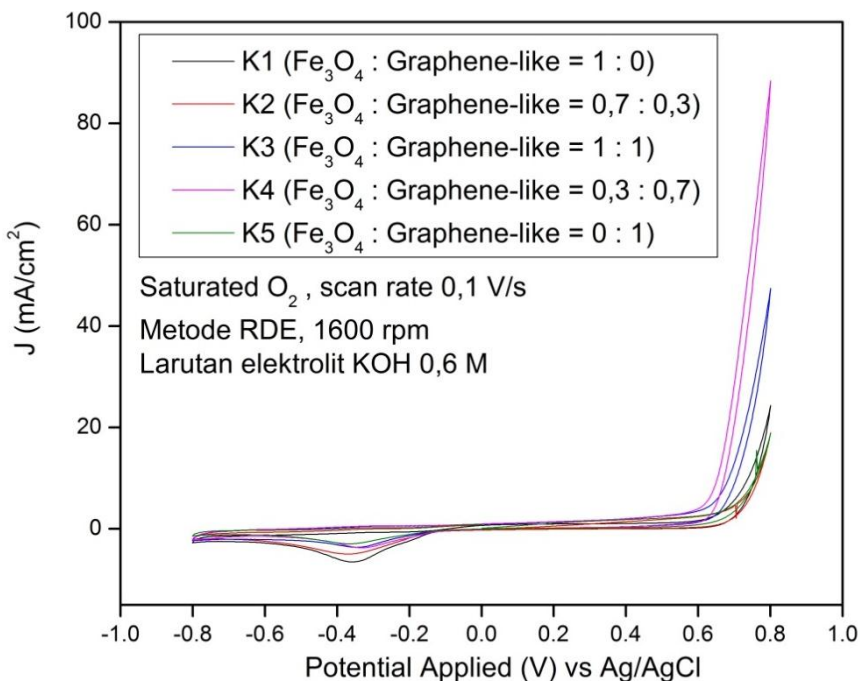
Unsur	Persentase Massa (%)
C	33,08
O	36,91
Fe	30,01

**Gambar IV.6** Analisa EDX Komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Graphene-like}$  dengan Komposisi  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  : *Graphene-like* (a) 0,7 : 0,3 (b) 1 : 1 (c) 0,3 : 0,7

## IV.2. Performansi Elektrokatalis

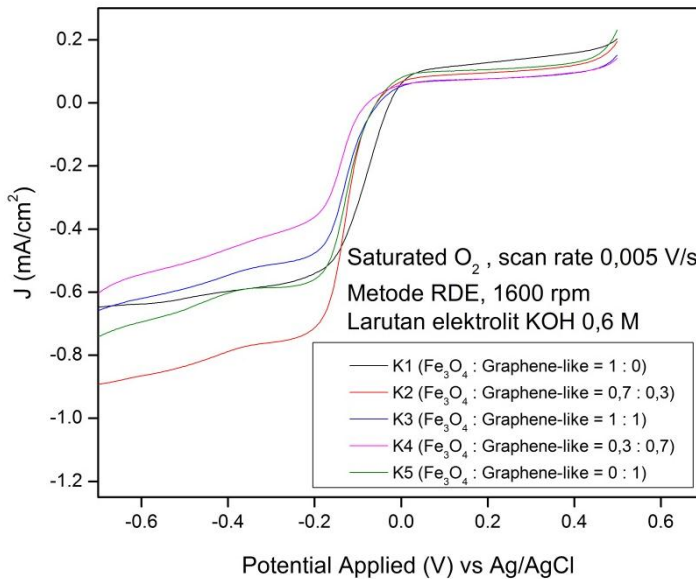
Performansi elektrokatalis  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , *graphene-like*, dan komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{graphene-like}$  dievaluasi menggunakan uji *Cyclic Voltammetry* (CV), *Linear Sweep Voltammetry* (LSV), dan *Linear Polarization* (LP) dalam media basa. Hasil uji *Cyclic Voltammetry* (CV) dalam larutan KOH 0,6 M yang jenuh  $\text{O}_2$

yang ditunjukkan oleh Gambar IV.7 menunjukkan bahwa terjadi aktivitas katalitik reaksi reduksi oksigen (*Oxygen Reduction Reaction, ORR*) dengan terbentuknya puncak pada bagian bawah. Hal ini berarti baik  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , *graphene-like* maupun komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{graphene-like}$  terbukti mampu mereduksi oksigen. Terlihat bahwa semakin banyak  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  maka semakin tajam *peak* yang terbentuk. Hal ini menandakan aktivitas katalitik yang semakin baik.



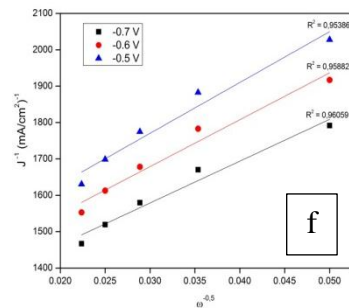
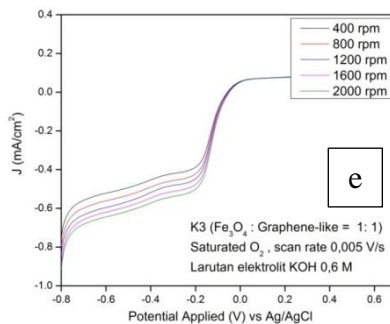
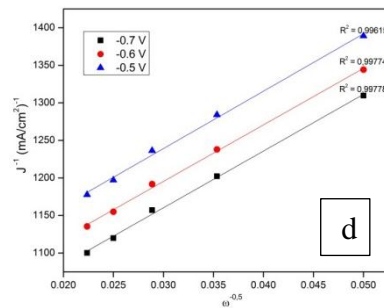
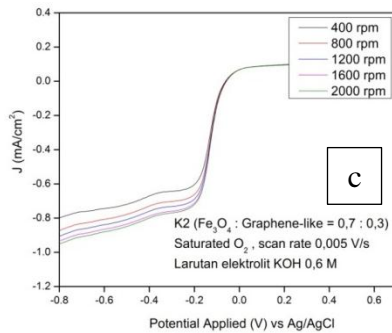
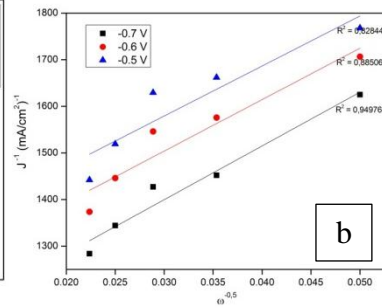
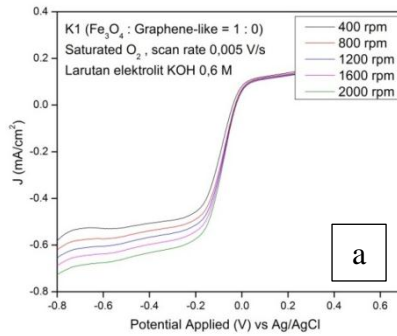
**Gambar IV.7** *Cyclic Voltammogram*  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , *Graphene-like*, dan Komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Graphene-like}$

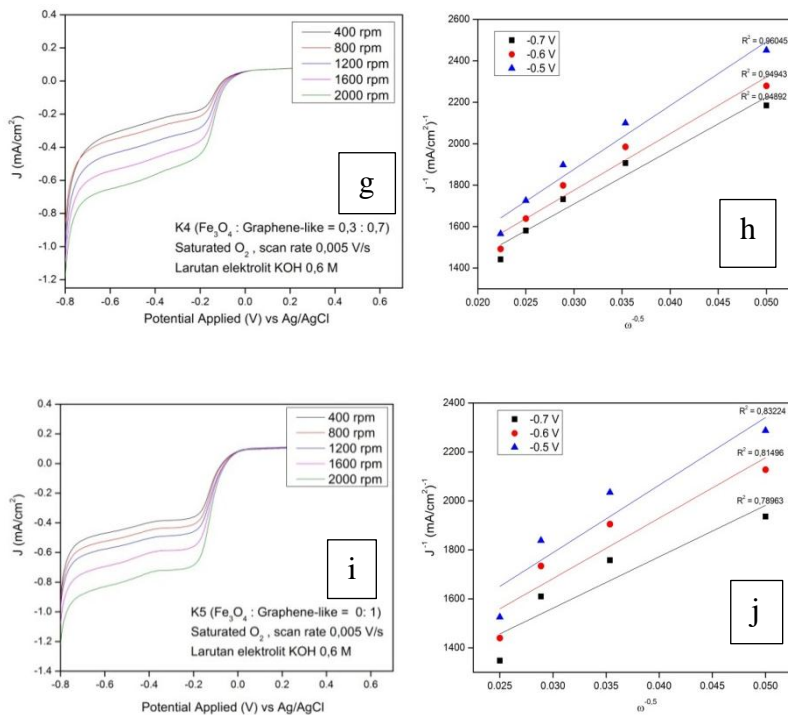
Mekanisme transfer elektron  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , *graphene-like*, dan komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{graphene-like}$  ditunjukkan melalui uji *Linear Sweep Voltammetry* (LSV). *Half-wave potential* dari kurva LSV merupakan indikator untuk mengevaluasi aktivitas katalitik elektrokatalis. Semakin positif *half-wave potential* semakin aktif elektrokatalis tersebut (Xing, Yin and Jiujun, 2014). Berdasarkan Gambar IV.8, terlihat bahwa semakin banyak  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  maka *half-wave potential* cenderung semakin ke kanan, yaitu pada rentang -0,1 hingga -0,2 V vs Ag/AgCl (semakin positif) dengan *limiting diffusion current* yang lebih tinggi. Hal ini berarti semakin banyak  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  maka aktivitas katalitik semakin baik.



**Gambar IV.8** *Linear Sweep Voltammogram* pada 1600 rpm







**Gambar IV.9** Linear Sweep Voltammogram dan Koutecky-Levich Plot (a), (b)  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , Komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Graphene-like}$  dengan Perbandingan (c), (d) 0,7 : 0,3 (e), (f) 1 : 1 (g),(h) 0,3 : 0,7 (i),(j) Graphene-like

Gambar IV.9 menunjukkan *Linear Sweep Voltammograms*  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , *graphene-like*, dan komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{graphene-like}$  pada kecepatan putar berbeda dari 400 rpm hingga 2000 rpm. Berdasarkan Gambar IV.8, *limiting current density* semakin meningkat seiring bertambahnya kecepatan putar. Jumlah

elektron yang ditransfer per molekul O<sub>2</sub> dalam reaksi reduksi oksigen ditentukan dengan Persamaan Koutecky-Levich (K-L equation).

$$\frac{1}{j} = \frac{1}{j_K} + \frac{1}{B\omega^{0,5}} \quad (2)$$

dimana  $j_K$  adalah *kinetic current* dan B adalah *Levich slope*.

$$B = 0,201 \text{ nF } (D_{O_2})^{2/3} \nu^{-1/6} C_{O_2} \quad (3)$$

Konstanta 0,201 digunakan jika kecepatan putar dalam rpm.  $n$  adalah jumlah elektron yang ditransfer untuk mereduksi satu molekul O<sub>2</sub>, F adalah konstanta Faraday ( $F = 96485 \text{ As/mol}$ ),  $D_{O_2}$  adalah koefisien difusi O<sub>2</sub> ( $D_{O_2} = 1,73 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s}$  untuk KOH 0,6 M),  $\nu$  adalah viskositas kinematik untuk KOH ( $\nu = 0,011 \text{ cm}^2/\text{s}$ ) dan  $C_{O_2}$  adalah konsentrasi O<sub>2</sub> dalam larutan ( $C_{O_2} = 9,9 \times 10^{-7} \text{ mol/cm}^3$ ).

Berdasarkan persamaan (2) dan (3), jumlah elektron yang ditransfer ( $n$ ) dapat ditentukan dari *slope* Koutecky-Levich dari plot  $j^{-1}$  vs  $\omega^{-1/2}$ . Jumlah elektron yang ditransfer untuk masing-masing sampel ditunjukkan oleh Tabel IV.2.

**Tabel IV.2** Jumlah Elektron yang Ditransfer ( $n$ ) Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>, *Graphene-like*, dan Komposit Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/*Graphene-like*

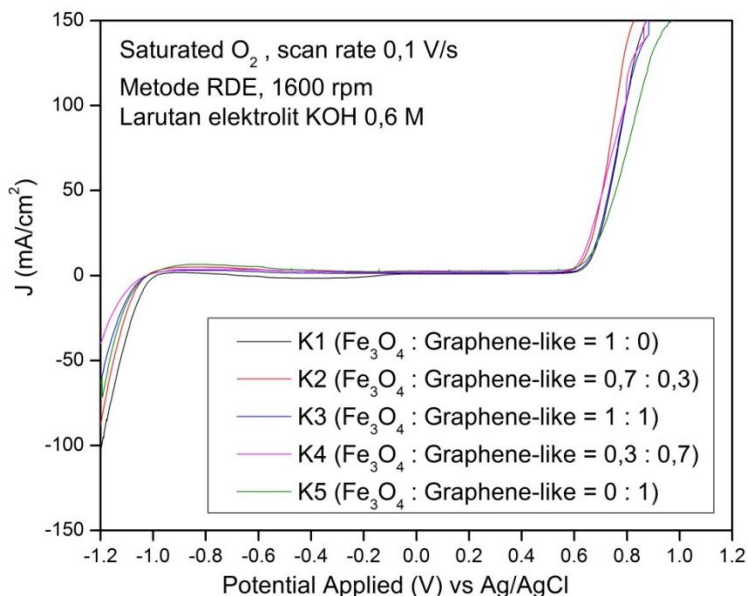
Sampel	$n$
K1 (Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> : <i>Graphene-like</i> = 1 : 0)	3,28
K2 (Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> : <i>Graphene-like</i> = 0,7 : 0,3)	4,00
K3 (Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> : <i>Graphene-like</i> = 1 : 1)	3,45
K4 (Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> : <i>Graphene-like</i> = 0,3 : 0,7)	2,75
K5 (Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> : <i>Graphene-like</i> = 0 : 1)	1,95

Tabel IV.2 menunjukkan bahwa Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> mampu mentransfer elektron lebih besar dibandingkan *graphene-like*. Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> mendekati mekanisme transfer elektron untuk 4 elektron, sedangkan *graphene-like* mengikuti mekanisme transfer elektron untuk 2 elektron. Dalam bentuk komposit, semakin banyak Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>

dalam komposit maka jumlah elektron yang ditransfer semakin besar. Berdasarkan jumlah elektron yang ditransfer, komposit dengan perbandingan  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  : *graphene-like* = 0,7 : 0,3 mengikuti mekanisme transfer untuk 4 elektron ( $n = 4$ ).



Dalam hal ini, mekanisme transfer 4 elektron lebih dikehendaki karena lebih efisien, yang mana menghindari terjadinya degradasi dini pada sel elektrokimia yang disebabkan oleh korosi atau oksidasi *support* karbon dan material lain oleh peroksida (Pan *et al.*, 2018).



**Gambar IV.10** Linear Polarization Curve  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , *Graphene-like*, dan Komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ /*Graphene-like*

Gambar IV.10 menunjukkan ORR/OER *polarization* dari  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , *graphene-like*, dan komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ /*Graphene-like*. *Current density* positif menunjukkan daerah anodik, sedangkan

*current density* negatif menunjukkan daerah katodik. Berdasarkan Gambar IV.10, terjadinya reaksi reduksi oksigen (ORR) ditunjukkan oleh terbentuknya kurva pada daerah katodik. Semakin besar *current density* maka semakin besar pula kemampuannya dalam mereduksi oksigen. Dapat diketahui pula bahwa baik  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , *graphene-like*, maupun komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Graphene-like}$  dapat berfungsi sebagai *bifunctional catalyst* yang ditunjukkan oleh terbentuknya kurva OER *polarization* pada daerah anodik. Dalam hal ini, semakin banyak komposisi  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dalam komposit maka semakin baik performa elektrokatalis yang dimiliki.

*(Halaman ini sengaja dikosongkan)*

## BAB V

### KESIMPULAN DAN SARAN

#### V.1. Kesimpulan

Berdasarkan penelitian dan pembahasan yang telah dilakukan, dapat disimpulkan bahwa

1. Komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{graphene-like}$  berhasil disintesis menggunakan *ball mill*. Baik *peak*  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  maupun *graphene-like* muncul pada hasil XRD komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{graphene-like}$ . Hal ini dikonfirmasi dengan munculnya *peak* Fe, C dan O pada hasil analisa EDX. Komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{graphene-like}$  memiliki luas permukaan antara 393 – 542  $\text{m}^2/\text{g}$  dengan ukuran pori 5,1 – 6,8 nm yang termasuk mesopori. Penambahan  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  berpengaruh pada penurunan luas permukaan partikel. Persebaran  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  pada permukaan *graphene-like* semakin merata dengan semakin besar penambahan  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ .
2. Komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{graphene-like}$  mampu mereduksi oksigen pada *potential* antara -0,35 hingga -0,38 V vs Ag/AgCl. Komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{graphene-like}$  mengikuti mekanisme transfer elektron untuk 4 elektron dengan semakin besar  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dalam komposit.
3. Komposit dengan karakteristik dan performansi elektrokatalis terbaik didapatkan pada komposisi  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  : *Graphene-like* = 0,7 : 0,3 dengan luas permukaan sebesar 439,430  $\text{m}^2/\text{g}$  dan jumlah elektron yang dapat ditransfer sebanyak 4 elektron.

#### V.2. Saran

Berdasarkan penelitian dan pembahasan yang telah dilakukan, saran untuk penelitian selanjutnya sebagai berikut:

1. Perlunya variasi komposisi yang lebih banyak sehingga dapat diketahui secara lebih rinci pengaruh komposisi  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{graphene-like}$  terhadap performansi elektrokatalisnya.

2. Pada uji CV perlu adanya perbandingan dengan hasil uji sampel pada kondisi  $N_2$  jenuh sehingga *peak* reduksi yang terbentuk dapat diidentifikasi lebih jelas.



## DAFTAR PUSTAKA

- Aliofkhazraei, M. *et al.* (2016) *Graphene Science Handbook Fabrication Methods*. New York: CRC Press.
- Blaney, L. (2007) 'Magnetite (  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  ): Properties , Synthesis , and Applications', 15. Available at: <http://preserve.lehigh.edu/cas-lehighreview-vol-15%0D>.
- Chen, Z. *et al.* (2017) 'A Hybrid Composite Catalyst of  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  nanoparticles-based Carbon for Electrochemical Reduction of Oxygen', *New Journal of Chemistry*. doi: 10.1039/C7NJ01379E.
- Cheng, S. (2012) 'Featuring work from the group of Professor Jun Chen at Key Laboratory of Advanced Energy Materials Chemistry (Ministry of Education), Chemistry College , As featured in: Chem Soc Rev', (207890). doi: 10.1039/c1cs15228a.
- Davari, E. and Ivey, D. G. (2018) 'Bifunctional Electrocatalysts for Zn–Air Batteries', *Sustainable Energy & Fuels*, 2(1), pp. 39–67. doi: 10.1039/C7SE00413C.
- Dewayanti, N. A. (2018) *Sintesis Graphene Berbasis Arang Tempurung Kelapa dengan Metode Hummer Termodifikasi dan Aplikasinya sebagai Katoda pada Metal-Air Battery*. Institut Teknologi Sepuluh Nopember Surabaya.
- Dewayanti, N. A. and Meiditaharja, P. (2016) *Sintesis Partikel Magnetite dengan Metode Elektrokimia Menggunakan Multielektroda*. Institut Teknologi Sepuluh Nopember Surabaya.
- Dubale, A. A., Su, W. and Tamirat, G. (2014) 'The Synergetic Effect of Graphene on  $\text{Cu}_2\text{O}$  Nanowire Arrays as a Highly Efficient Hydrogen Evolution Photocathode in Water Splitting †', pp. 18383–18397. doi: 10.1039/C4TA03464C.
- Huo, X. *et al.* (2013) 'A One-Step Method to Produce Graphene-

- $\text{Fe}_3\text{O}_4$  Composites and Their Excellent Catalytic Activities for Three-Component Coupling of Aldehyde, Alkyne, and Amine', pp. 651–656. doi: 10.1039/c2ta00485b.
- Kartika, D. L. (2017) 'High Performance Electrocatalyst for Oxygen Reduction Reaction of Magnetite Nanoparticle-Based as a Cathode Metal-Air Battery', (June), pp. 15–18.
- Khadifah, F. M. and Nurisal, R. (2017) *Sintesis Graphene Berbasis Arang Tempurung Kelapa dengan Metode Hummer Termodifikasi*. Institut Teknologi Sepuluh Nopember Surabaya.
- Kim, H. *et al.* (2014) 'All-Graphene-Battery: Bridging The Gap Between Supercapacitors and Lithium Ion Batteries', pp. 1–8. doi: 10.1038/srep05278.
- Kim, M. *et al.* (2017) 'Graphene-Based Composite Electrodes for Electrochemical Energy Storage Devices: Recent Progress and Challenges', *FlatChem*, 6, pp. 48–76. doi: 10.1016/j.flatc.2017.08.002.
- Krishna, R. *et al.* (2016) 'Green and Facile Decoration of  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  Nanoparticles on Reduced Graphene Oxide', *Materials Today: Proceedings*. Elsevier Ltd, 3(8), pp. 2807–2813. doi: 10.1016/j.matpr.2016.06.030.
- Lee, J.-S. *et al.* (2011) 'Metal-Air Batteries with High Energy Density: Li-Air versus Zn-Air', *Advanced Energy Materials*, 1(1), pp. 34–50. doi: 10.1002/aenm.201000010.
- Lv, H. *et al.* (2015) 'A Novel litchi-like  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ /graphene Composite Catalyst for the Lithium – Air Battery', 10, pp. 7622–7630.
- Ma, J. *et al.* (2014) 'Facile Synthesis of  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  Nanoparticles with a High Specific Surface Area', 55(12), pp. 1900–1902.
- Movlaee, K. *et al.* (2017) 'Iron-Based Nanomaterials/Graphene Composites for Advanced Electrochemical Sensors', *Nanomaterials*, 7(12), p. 406. doi:

- 10.3390/nano7120406.
- Namazi, M. N. H. (2014) 'Clicking Graphene Oxide and  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  Nanoparticles Together: An Efficient Adsorbent to Remove Dyes From Aqueous Solutions'. doi: 10.1007/s13762-014-0595-y.
- Pan, J. *et al.* (2018) 'Advanced Architectures and Relatives of Air Electrodes in Zn – Air Batteries', 1700691. doi: 10.1002/advs.201700691.
- Pratama, O. I. and Izzati, R. F. (2017) *Sintesis  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dengan Metode Elektrokimia sebagai Elektrokatalis pada Metal-Air Battery*. Institut Teknologi Sepuluh Nopember Surabaya.
- Sing, K. S. W. *et al.* (1985) 'International Union of Pure Commission on Colloid and Surface Chemistry Including Catalysis \* Reporting Physisorption Data for Gas/Solid Systems with Special Reference to the Determination of Surface Area and Porosity', *Pure and Applied Chemical*, 57(4), pp. 603–619.
- Tian, W. *et al.* (2017) 'A Review on Lattice Defects in Graphene: Types , Generation , Effects and Regulation'. doi: 10.3390/mi8050163.
- Wu, W. *et al.* (2015) 'Recent Progress on Magnetic Iron Oxide Nanoparticles: Synthesis, Surface Functional Strategies and Biomedical Applications', *Science and Technology of Advanced Materials*, 16(2), p. 23501. doi: 10.1088/1468-6996/16/2/023501.
- Wu, Y., Shen, Z. and Yu, T. (2014) *Two-Dimensional Carbon Fundamental Properties, Synthesis, Characterization and Applications*. New York: CRC Press.
- Wu, Z.-S. *et al.* (2012) 'Graphene/Metal Oxide Composite Electrode Materials for Energy Storage', *Nano Energy*, 1(1), pp. 107–131. doi: 10.1016/j.nanoen.2011.11.001.
- Xing, W., Yin, G. and JiuJun, Z. (2014) 'Rotating Electrode Methods and Oxygen Reduction Electrocatalysts', in. Poland: Elsevier.

Zhang, X. *et al.* (2016) ‘Recent Progress in Rechargeable Alkali Metal–Air Batteries’, *Green Energy & Environment*, 1(1), pp. 4–17. doi: 10.1016/j.gee.2016.04.004.

## APPENDIKS

### Perhitungan Jumlah Elektron yang Ditransfer (n)

1. Melakukan konversi data *current* (A) hasil uji menjadi *current density* (mA/cm<sup>2</sup>)

Contoh perhitungan :

Diketahui data hasil uji

<i>Potential Applied</i> (V)	<i>Current</i> (A) x 10 <sup>5</sup>				
	400 rpm	800 rpm	1200 rpm	1600 rpm	2000 rpm
-0,70236	-1,93	-2,16	-2,24	-2,34	-2,45

Diameter *disk electrode* (d) = 0,2 cm

Menghitung *current density* (j) pada 400 rpm

$$-j = \frac{\text{Current}}{\text{Luas disk electrode}} = \frac{-1,93 \times 10^{-5} \text{ A}}{\frac{1}{4} \times 3,14 \times 0,2^2 \text{ cm}^2} = -0,0006154 \frac{\text{A}}{\text{cm}^2}$$

$$j = 0,0006154 \frac{\text{A}}{\text{cm}^2}$$

2. Menghitung *slope* Persamaan Koutecky-Levich  
Persamaan Koutecky-Levich (K-L equation).

$$\frac{1}{j} = \frac{1}{j_K} + \frac{1}{B\omega^{0,5}}$$

(1)

dimana  $j_K$  adalah *kinetic current* dan B adalah *Levich slope*.

$$B = 0,201 \text{ nF } (D_{O_2})^{2/3} \nu^{-1/6} C_{O_2}$$

(2)

Keterangan:

0,201 = konstanta (apabila kecepatan putar dalam rpm)

$n$  = jumlah elektron yang ditransfer untuk mereduksi satu molekul O<sub>2</sub>

F = konstanta Faraday (F = 96485 As/mol)

D<sub>O<sub>2</sub></sub> = koefisien difusi O<sub>2</sub> (D<sub>O<sub>2</sub></sub> = 1,73 x 10<sup>-5</sup> cm<sup>2</sup>/s untuk KOH 0,6 M)

$\nu$  = viskositas kinematik KOH ( $\nu$  = 0,011 cm<sup>2</sup>/s)

$C_{O_2}$  = konsentrasi  $O_2$  dalam larutan ( $C_{O_2} = 9,9 \times 10^{-7}$  mol/cm<sup>3</sup>)

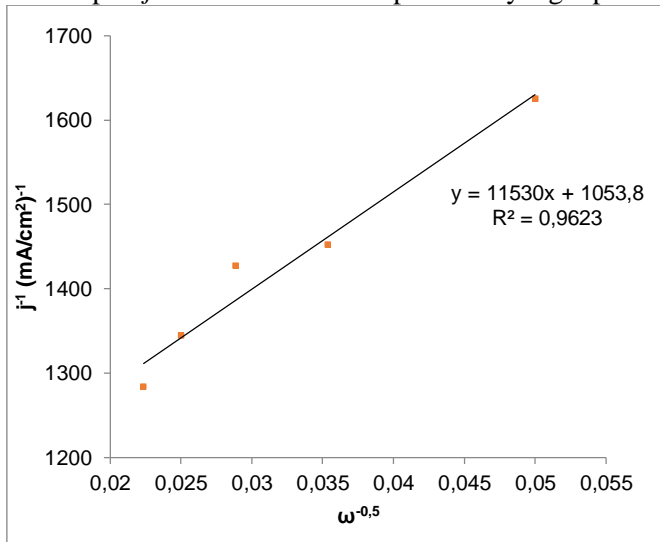
Berdasarkan persamaan (1) dan (2), jumlah elektron yang ditransfer dapat diketahui melalui *slope* ( $B^{-1}$ ). Oleh karena itu, dibuat plot  $j^{-1}$  vs  $\omega^{-0,5}$ .

Contoh perhitungan  $j^{-1}$  dan  $\omega^{-1}$  (400 rpm)

$$\frac{1}{j} = \frac{1}{0,0006154} = 1624,95$$

$$\frac{1}{\omega^{0,5}} = \frac{1}{400^{0,5}} = 0,05$$

3. Menghitung jumlah elektron yang ditransfer ( $n$ )  
Membuat plot  $j^{-1}$  vs  $\omega^{-0,5}$  untuk setiap voltase yang dipilih.



Nilai *slope* ( $B^{-1}$ ) yang didapatkan dari plot digunakan untuk menghitung  $n$  dari persamaan (2). Berdasarkan persamaan garis, nilai *slope* ( $B^{-1}$ ) adalah 11530.

$$B = 0,201 \text{ nF } (D_{O_2})^{2/3} \nu^{-1/6} C_{O_2}$$

Menghitung B

$$B = \frac{1}{B^{-1}} = \frac{1}{11530} = 0,00008673$$

Menghitung  $n$  dengan memasukkan semua parameter yang diketahui

$$\begin{aligned} B &= 0,201 \text{ nF } (D_{O_2})^{2/3} v^{-1/6} C_{O_2} \\ 0,00008673 &= 0,201 \times n \times 96485 \times (1,73 \times 10^{-5})^{2/3} \times 0,011^{-1/6} \\ &\times 9,9 \times 10^{-7} \\ n &= 3,18 \end{aligned}$$

Menghitung  $n$  rata-rata dari semua voltase yang dipilih.





## RIWAYAT PENULIS



**Cicik Khoirun Nisa'.** Penulis dilahirkan di Jombang pada tanggal 7 Juli 1995 yang merupakan anak pertama dari tiga bersaudara adalah anak dari pasangan suami istri, Ibu Dra. Muzdalifah dan Bapak Drs. Ismail. Penulis telah menempuh pendidikan formal yaitu lulus dari MI Mujahidin Jombang (2007), SMP Negeri 2 Jombang (2010) dan SMA Negeri 3 Jombang (2013). Penulis menyelesaikan studi pada Program Studi Diploma III Teknik Kimia FTI-ITS

dengan Tugas Akhir berjudul "Pabrik Etilbenzena dari Benzena dan Etilena dengan Proses Fase Uap" di bawah bimbingan Ibu Prof. Dr. Ir. Danawati Hari Prajitno, M.Pd. dan Ibu Nurlaili Humaidah S.T., M.T. pada tahun 2016. Pada tahun yang sama, penulis melanjutkan studi pada Program Studi Sarjana Teknik Kimia FTI-ITS dan berhasil menyelesaikan Tugas Pra-Desain Pabrik Gliserol Monostearat dan Skripsi dengan judul " Sintesis Komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Graphene-like}$  sebagai Elektrokatalis Katoda pada *Zn-Air Battery*" di bawah bimbingan Bapak Prof. Dr. Ir. Heru Setyawan, M. Eng. dan Ibu Dr. Widiyastuti, S.T., M.T di Laboratorium Elektrokimia dan Korosi. Selama kuliah penulis pernah menjadi asisten Laboratorium Teknologi Makanan (2015), Teknologi Biofuel, Atsiri, Nabati (2016), dan Operasi Teknik Kimia III (2017) DIII Teknik Kimia FTI-ITS. Selain itu, penulis juga aktif berorganisasi sebagai Staff Bidang Pengembangan Sumber Daya Mahasiswa (2014-2015) dan Staff Bidang Akademik dan Kesejahteraan Himpunan Mahasiswa DIII Teknik Kimia FTI-ITS (2015-2016) serta beberapa pelatihan dan seminar yang diadakan di Institut Teknologi Sepuluh Nopember Surabaya (ITS). Penulis pernah melaksanakan kerja praktek di PT. Petrokimia, Gresik (2015 dan 2017).

Email : [cicikknisa@gmail.com](mailto:cicikknisa@gmail.com)